LICHTSTREUUNG
IN DER NÄHE ATOMARER RESONANZEN
MIT MULTIPLETT-STRUKTUR

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Düsseldorf

vorgelegt von
Volker Kroop
aus Hamburg

Düsseldorf 1983

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41535714_0020

LICHTSTREUUNG IN DER NÄHE ATOMARER RESONANZEN MIT MULTIPLETT-STRUKTUR

I n a u g u r a l - D i s s e r t a t i o n

zur

Erlangung des Doktorgrades der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Düsseldorf

vorgelegt von

Volker Kroop

aus Hamburg

Düsseldorf 1983

1.Berichterstatter: Prof. Dr. W. Behmenburg

2.Berichterstatter: Prof. Dr. J. Uhlenbusch

Tag der mündlichen Prüfung: 20.12.83

Inhaltsangabe

	Seite
1. Einleitung	1
2. Theoretische Beschreibung atomarer Eigenschaften	9
2.1. Darstellung der Dichtematrix durch Tensoroperatoren	13
2.2. Erzeugung und Nachweis atomarer Polarisation	17
3. Umverteilung von Resonanzstrahlung	21
3.1. Historischer Rückblick	21
3.2. Umverteilung nahe der Na(3S↔3P)-Resonanz	23
3.2.1. Rayleighstreuung ohne Stöße	23
3.2.2. Stoßinduzierte Fluoreszenz	31
3.2.2.1. Resonante Anregung	32
3.2.2.2. Anregung in den stoßbestimmten Linienflügeln	33
3.3. Theorie der Umverteilung, Faktorisierungsapproximation	36
3.3.1. Streuspektrum	37
3.3.2. Anregungsfunktionen	41
3.4. Anwendung der Theorie auf Na(3S↔3P)	
3.4.1. Anregung im Dopplerkern der D_2-Linie	42
3.4.2. Anregung in den stoßbestimmten Linienflügeln	44
3.5. Experimentelle Methoden	48
3.5.1. Apparative Grundausstattung	48
3.5.2. Messung des Polarisationsgrades	54
3.5.3. Äußeres Magnetfeld	55

Seite

3.6. Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie 59
3.6.1. Rayleighstreuung 59
3.6.2. Stoßinduzierte Fluoreszenz 62
3.6.2.1. Anregung im Dopplerkern der D_2-Linie 63
3.6.2.2. Anregung in den stoßbestimmten Linienflügeln 68

4. Halbstöße von Na 3P-Atomen mit Edelgasen 77

4.1. Stoßprozesse und interatomare Potentiale 77

4.2. Spektroskopie von Halbstößen 80
4.2.1. Präparation und Relaxation angeregter Zustände währed des Stoßes 81
4.2.2. Bestimmung der Relaxationswahrscheinlichkeit $\bar{P}(\omega_L)$ als Funktion der Absorptionsfrequenz 83
4.2.3. Transformation der ω_L-Skala in die b-Skala 86

4.3. Theorie der Stoßrelaxation 88
4.3.1. Relaxationsmechanismen 88
4.3.2. Wirkungradien und kritische Absorptionsfrequenzen 93
4.3.3. Wahrscheinlichkeitsfunktionen $P_J^{(k)}(b,R_L)$ 95
4.3.4. Resultate der numerischen Rechnung 102

4.4. Wahrscheinlichkeitsfunktionen aus dem Experiment 106
4.4.1. FS-Überführung $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ 106
4.4.2. Depolarisation von $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$ 112

4.5. Experimentelle Anordnung 118
4.5.1. Natriumzelle 118
4.5.2. D_2/D_1-Fluoreszenzverhältnis 123
4.5.3. Zirkularpolarisation der D_1-Fluoreszenz 124

Seite

4.6. Meßergebnisse u. Vergleich mit der Theorie 128
4.6.1. FS-Überführung 128
4.6.2. $^2P_{3/2}$-Disalignment 135
4.6.3. $^2P_{1/2}$-Desorientierung 138

4.7. Ausblick 142

5. Zusammenfassung 144

Literaturverzeichnis 148

Anhang 152

Geräteliste 157

Dank 158

Lebenslauf 159

1. Einleitung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Lichtstreuung an verdünnten, atomaren Gasen im Bereich thermischer Energien.Der Akzent der Untersuchungen liegt dabei auf der Streuung in der Nähe atomarer Resonanzen sowohl durch isolierte Atome als auch während Stößen mit Atomen eines umgebenden Puffergases.

Bestrahlt man ein 2-Niveau-Atom mit monochromatischem Licht der Frequenz ω_L, so wird ein Teil des Lichts gestreut. In Abwesenheit von Stößen und bei kleinen Intensitäten ist das Streuspektrum eine einzelne Linie bei der einfallenden Frequenz, bekannt als Rayleigh-Streuung (RS).In der Nähe einer atomaren Resonanz wächst der Querschnitt für Rayleigh-Streuung stark an.Diese resonante Verstärkung wird ausgenutzt bei einer bekannten Methode zur Messung der Neutralteilchendichte in heißen Plasmen /1/.

Bei einem Ensemble von Atomen mit Abständen vergleichbar zur Wellenlänge des Lichts treten Interferenzerscheinungen auf, welche die räumliche Verteilung der Streustrahlung beeinflussen.Regelmäßige Anordnung der Atome, wie im Festkörper, kann zu vollständiger Auslöschung in seitlicher Richtung führen.Dichteschwankungen, wie in Flüssigkeiten oder dichten Gasen, stören solche destruktiven Interferenzen, sodaß auch in seitlicher Richtung die gestreute Intensität von Null verschieden ist.Bei den in dieser Arbeit

untersuchten Kaltgasen mit Anzahldichten der Atome von maximal $10^{11}cm^{-3}$ sind jedoch solche Interferenzeffekte vernachlässigbar.

In Anwesenheit von Stößen hat das gestreute Licht neben der Rayleigh-Komponente noch eine zweite Komponente, die um die Resonanzfrequenz ω_o emittiert wird, bekannt als umverteilte oder stoßinduzierte Fluoreszenz (CIF).Diese Komponente entsteht, weil die Energiedifferenz zwischen Laserphoton und dem gestreuten Photon der kinetischen Energie der Stoßpartner entnommen wird.
Die Intensität der Fluoreszenzlinie wächst mit der Stoßrate. Demgegenüber ist die Intensität der Rayleigh-Komponente unbeeinflußt von Stößen, was ein wesentlicher Vorteil bei der o.g. plasmadiagnostischen Methode ist.Darüberhinaus ist die Fluoreszenzlinie, anders als die Rayleighlinie, stoßverbreitert (Phasenstörungsstöße).

Bei höherer Laserintensität ist die Frequenz der Fluoreszenzkomponente infolge des a.c.-Stark-Effekts verschoben. Außerdem erscheint im Spektrum eine dritte Komponente durch Photonen-Wechselwirkung höherer Ordnung.Bei den vorliegenden Untersuchungen spielen jedoch diese intensitätsabhängigen Effekte keine Rolle.

Ist das obere atomare Niveau entartet und das eingestrahlte Licht polarisiert, so findet neben der spektralen Umverteilung eine Modifikation der räumlichen Umverteilung statt:

das Streulicht ist teilweise depolarisiert.Diese Depolarisation ist bedingt durch eine Umorientierung der atomaren Drehimpulse beim Streuprozess.Werden z.B. die Atome durch resonante Absorption von π-polarisiertem Licht angeregt und bewirken Stöße anschließend Übergänge in benachbarte Zeeman-Zustände, so enthält die reemittierte Fluoreszenz σ-Komponenten zusätzlich zur eingestrahlten π-Komponente, d.h. der Polarisationsgrad der Fluoreszenz ist vermindert.

Betrachten wir schließlich den Fall, bei dem mehr als ein angeregtes Niveau am Stoßprozess teilnimmt, z.B. im Fall der Spin-Bahn-Aufspaltung eines Alkali-Resonanzniveaus. Diese Subniveaus werden durch Kohärenzen und/oder inelastische Stöße gekoppelt, wodurch Spektrum und Polarisation der Streustrahlung zusätzlich modifiziert werden.

Alle diese Effekte werden quantitativ dargestellt durch die Theorie der Redistribution (TR), deren historische Entwicklung in 3.1. aufgezeigt wird.Erste Experimente am Strontium-Resonanzübergang mit einem gepulsten Farbstofflaser /2/ hatten hauptsächlich die Untersuchung der Effekte extrem starker Lichtfelder zum Gegenstand.Demgegenüber liegt der Akzent der vorliegenden Arbeit auf der Untersuchung von Stößen mit einer doppelten Zielsetzung:

1) Experimentelle Prüfung verschiedener Voraussagen der Theorie der Redistribution (Kapitel 3).

2) Anwendung der stoßinduzierten Fluoreszenz als Sonde zur Untersuchung der Dynamik von Halbstößen in angeregten Elektronenzuständen (Kapitel 4).

Für die Untersuchung der Redistribution von besonderem Interesse erscheinen Alkali-Resonanzübergänge $n^2S \leftrightarrow n^2P$ die wegen ihrer Multiplettstruktur (Spin-Bahn-Aufspaltung, Hyperfein-Wechselwirkung) eine starke Variation von Intensität und Polarisation der Streustrahlung mit der Anregungsfrequenz erwarten lassen.Insbesondere sollten die beiden Feinstruktur-Komponenten der stoßinduzierten Fluorezenz ein ganz anderes Frequenzverhalten zeigen als die durch Stöße unbeeinflußte Rayleigh-Linie.

Ebenso von Interesse ist das Verhalten des Polarisationsgrades der Fluoreszenzkomponenten bei Anregung in den quasistatischen Linienflügeln, d.h. bei Resonanzabweichungen groß gegen die reziproke Stoßdauer.In diesem Bereich erfolgt die Anregung selektiv bei kleinen Kernabständen der Stoßpartner, bei denen der Elektronenspin an die internukleare Achse koppelt und sich während des Stoßes dreht.Dies sollte anschaulich eine stärkere Depolarisation zur Folge haben als bei Anregung im Linienkern (Lorentzbereich), wo große Kernabstände dominieren /3/.Andererseits erwartet man nach der TR jenseits des Lorentzbereichs einen Anstieg des Polarisationsgrades für den Fall, daß Stöße und Absorption von Lichtquanten unkorreliert erfolgen und die

Absorption schwächer als lorentzförmig abnimmt /4/.Aufgabe des Experiments ist es über die Richtigkeit einer der beiden sich widersprechenden Voraussagen zu entscheiden.

Die in dieser Arbeit erstmalig vorgestellte und angewandte Methode zur Untersuchung der Dynamik von Halbstößen angeregter Moleküle beruht auf folgendem Prinzip (Fig.1):

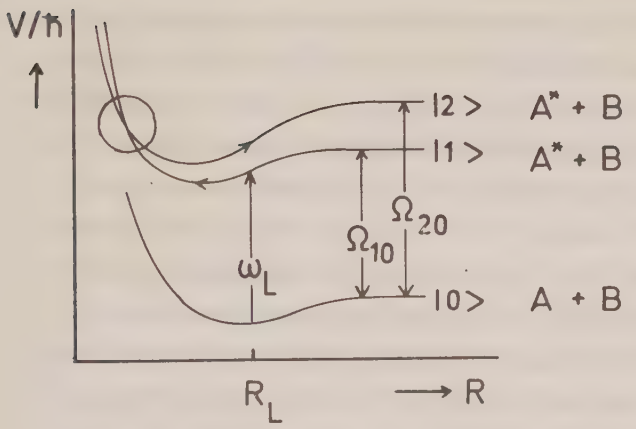

Fig. 1. Präparation eines angeregten Molekülzustandes beim Kernabstand R_L der Stoßpartner durch Photonenabsorption $\hbar\omega_L$ im quasistatischen Flügel eines Übergangs des aktiven Atoms A.

Die Präparation des interessierenden angeregten Zustandes $|1\rangle$ erfolgt durch Absorption eines Laserphotons ω_L aus dem Grundzustand $|0\rangle$ während des Stoßes bei einem bestimmten Kernabstand R der Stoßpartner.Bedingung für die R-Selektion bei der Anregung ist, daß die Resonanzabweichung $|\omega_L - \Omega_{10}|$ des Photons groß ist gegen die reziproke Stoßdauer (Absorption in den quasistatischen Linieflügel); dabei ist $\omega_L(R)$ aufgrund des Franck-Condon-Prinzips bestimmt durch die Differenz der zugeordneten adiabatischen molekularen Potentiale $\hbar\omega_L = V_1(R) - V_0(R)$.Im weiteren Stoßverlauf unmittelbar nach der Anregung erfolgt nun mit einer bestimmten, von ω_L abhängigen Wahrscheinlichkeit $\bar{P}_{12}(\omega_L)$ ein Übergang in den Nachbarzustand $|2\rangle$ in der Nähe eines Kreuzungs-(Antikreuzungs)punktes der Potentiale.Die Messung der Übergangswahrscheinlichkeit erfolgt über die Besetzung der beiden Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ bzw. über die aus diesen Zuständen emittierte Fluoreszenz.Die gemessene ω_L -abhängige Wahrscheinlichkeit kann transformiert werden in die vom Stoßparameter b abhängige Wahrscheinlichkeit $P_{12}(b,R_L)$ bzw. den zugeordneten differentiellen Stoßquerschnitt $P_{12}(b,R_L)bdb$. Dies ist möglich aufgrund der Tatsache, daß für das an der Anregung beteiligte Ensemble von Stoßpaaren näherungsweise gilt $b \leq R(\omega_L)$.

Sowohl unter dem Aspekt der Stoßredistribution als auch zur Untersuchung der Dynamik von Halbstößen erscheint das System Na(3S $\leftrightarrow$ 3P)/Ar3S von besonderem Interesse. Anders als für das kürzlich von anderen Autoren /5/ unter-

suchte System Sr(5S $\leftrightarrow$ 5P)/Ar3S liegen hier nämlich experimentelle und semiempirische Daten über Wechselwirkungspotentiale und Stoßquerschnitte vor.Dadurch wird die qualitative Interpretation der Messung erleichtert und darüberhinaus ein experimenteller, quantitativer Test verschiedener approximativer Stoßtheorien ermöglicht.Insbesondere gestattet dieses System neben der Untersuchung der unterschiedlichen Mechanismen für Stoß-Depolarisation für $^2P_{1/2}$- und $^2P_{3/2}$-Atome einen Test verschiedener Modelle für die Stoßüberführung zwischen den Feinstrukturniveaus $Na3^2P_{1/2}+X \rightleftharpoons Na3^2P_{3/2}+X$. Während charakteristische Depolarisationsursache bei $^2P_{3/2}$-Atomen die unterschiedliche Stoß-Phasenstörung in den beiden Molekülzuständen $A^2\Pi_{3/2}$ und $B^2\Sigma_{1/2}$ ist, die vom atomaren $^2P_{3/2}$-Zustand ausgehen, depolarisieren $^2P_{1/2}$-Atome ausschließlich durch Rotation des Drehimpulses mit der Kernverbindungsachse während des Stoßes /6/.Darüberhinaus ist für Feinstruktur-Überführung, anders als für Depolarisation, wesentliche Voraussetzung das Aufbrechen der Spin-Bahn-Kopplung.Diese Entkopplung sollte bei Kernabständen erfolgen, bei denen die Π- Σ-Aufspaltung von $^2P_{3/2}$ vergleichbar wird zur ungestörten atomaren Feinstrukturaufspaltung /7/.Auf der Grundlage eines adiabatischen Stoßmodells, in dem die stoßenden Atome ein molekulares System bilden, haben Lewis et al. 1971 explizite Ausdrücke für Phasenstörung und Rotation, sowie differentielle Querschnitte für die betrachteten Prozesse angegeben /8/.

Ein experimenteller Test dieser Theorie war bisher nur

durch Vergleich mit totalen Querschnitten aus Fluoreszenzmessungen möglich, wo die Fluoreszenzanregung resonant mittels einer Doppler-verbreiterten, festfrequenten Spektrallinie erfolgte /9/,/10/.Demgegenüber ermöglicht die Messung der Stoßwahrscheinlichkeit $\bar{P}(\omega_L)$ als Funktion der Anregungsfrequenz ω_L mittels eines durchstimmbaren Lasers einen sehr viel empfindlicheren Test.

Methode und Ergebnisse werden in Kapitel 4 ausführlich dargestellt.Es zeigt sich, daß die gemessene Wahrscheinlichkeitsfunktionen für Feinstruktur-Überführung und Depolarisation im qualitativen Verlauf von der Theorie reproduziert werden.Die gefundenen quantitativen Abweichungen werden mittels der in der Methode gemachten Annahmen (Gültigkeit der quasistatischen Theorie, adiabatisches Stoßmodell) im einzelnen diskutiert.Darüberhinaus liefern die Meßergebnisse direkte Informationen über Verläufe der $^1\Pi$- und $^1\Sigma$ -Potentiale bei großen Kernabständen; insbesondere gestattet die Beobachtung ω_L-selektiver Depolarisation die Bestimmung des Kreuzungspunktes der $A^2\Pi_{3/2}$- und $B^2\Sigma_{1/2}$- -Potentiale.

2. Theoretische Beschreibung atomarer Eigenschaften

Der verallgemeinerte Zustand $|\Psi(t)\rangle$, in dem sich ein Atom befindet, kann als lineare Superposition von Basiszuständen $|n\rangle$ beschrieben werden

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) \; |n\rangle \qquad (2.1)$$

Für die genaue Kenntnis des Zustandes ist daher die Kenntnis der als Entwicklungskoeffizienten auftetenden Wahrscheinlichkeitsamplituden $a_n(t)$ notwendig, die ihrerseits den Mittelwert physikalischer Größen, wie Drehimpuls oder elektrisches Dipolmoment festlegen, die diesen Zustand charakterisieren /11/.

Die entscheidende Größe für die Zustandsbeschreibung eines Atomensembles ist die Dichtematrix

$$\rho_{nn'} = \langle a_n(t) \; a_{n'}^*(t) \rangle \qquad (2.2)$$

wo $\langle\ \rangle_e$ die Mittelung über das Ensemble bezeichnet. Für den Mittelwert der erwähnten physikalischen Größen $\langle\hat{G}\rangle$ erhält man damit

$$\langle \hat{G} \rangle = Tr[\hat{\rho}\ \hat{G}] = \sum_n \langle n|\hat{\rho}\ \hat{G}\ |n\rangle \qquad (2.3)$$

Die Diagonalelemente der Dichtematrix ρ_{nn} geben die Wahrscheinlichkeit an, mit der sich ein Atom im Zustand $|n\rangle$ befindet. Die Nichtdiagonalelemente $\rho_{nn'}$ stellen die Kohärenz zwischen verschiedenen Zuständen dar, die bei gleichzeitiger Anregung dieser Zustände erzeugt wird.

Wir betrachten nun die zeitliche Entwicklung der Wellenfunktion $|\Psi(t)\rangle$ eines angeregten atomaren Zustandes unter dem Einfluß eines Lichtfeldes und von Relaxationsprozessen. Diese Zeitentwicklung wird durch die Schrödingergleichung beschrieben; die analoge Bewegungsgleichung für den Dichteoperator ist die Liouville-Gleichung /9/

$$\dot{\hat{\rho}} = \hat{s} - \Gamma\hat{\rho} - \hat{\gamma}\hat{\rho} \qquad (2.4)$$

Hierin beschreibt $\hat{s}$ die äußere Anregung durch die Lichtwelle als Pumpprozeß, $\Gamma\hat{\rho}$ den spontanen Zerfall und $\hat{\gamma}\hat{\rho}$ die Relaxation durch Stöße.

Ein Untersuchungsgegenstand der vorliegenden Arbeit ist die Stoßdepolarisation angeregter Atome,d.h. die stoßinduzierte Besetzungsunverteilung auf den Zeeman-Subniveaus, am Beispiel von $Na\,3^2P$.Untersuchungsmethode dabei ist die Messung der räumlichen Verteilung, d.h.,des Polarisationsgrades der aus dem angeregten Niveau emittierten Fluoreszenz nach Absorption von polarisiertem Licht aus dem Grundzustand. Die Fluoreszenzintensität ist darstellbar mittels der Dichtematrix $\hat{\rho}$ für den angeregten Zustand sowie einen Nachweisoperator $\hat{A}$ für die emittierte Dipolstrahlung /9/

$$I(\underline{f},\underline{g}) \sim \mathrm{Tr}\,[\hat{\rho}\,\hat{A}] \qquad (2.5)$$

wobei $\underline{f},\underline{g}$ die Polarisationsvektoren der absorbierten bzw. reemittierten Strahlung bezeichnen.Vernachlässigt man zunächst Fein- und Hyperfeinstruktur, d.h., beschränkt sich auf nur einen Drehimpulszustand $|j_i,m_i\rangle$ für das Ausgangsniveau i und einen Drehimpulszustand $|j_f,m_f\rangle$ für den Endzustand f des Dipolüberganges,so ergibt sich aus Gl.(2.5)

$$I(\underline{f},\underline{g}) \sim \sum_{m_i m_i'} \rho_{m_i m_i'}(\underline{f})\, A_{m_i' m_i}(\underline{g}) \qquad (2.6)$$

$$A_{m_i' m_i}(\underline{g}) = \sum_{m_f} \langle m_i' |\underline{g}\,\hat{\underline{d}}| m_f\rangle \langle m_f |\underline{g}\,\hat{\underline{d}}| m_i\rangle$$

wobei die Summation über alle Zeeman-Subniveaus m_i, m_f erfolgt. Bei bekannten Dipol-Übergangsmatrixelementen $\langle m_i | \underline{g}\ \underline{d} | m_f \rangle$ d.h. $A_{m_i' m_i}$, liefert die Messung von $I(\underline{f},\underline{g})$ über Gl.(2.6) Informationen über die Besetzungsverteilung $\rho_{m_i m_i'}$ und mit Gl.(2.4) über die Raten $\gamma_{m_i m_i'}$ für Stoßüberführung zwischen den Zeeman-Niveaus, die zu einer Verminderung der atomaren Polarisation führt.

2.1. Darstellung der Dichtematrix durch Tensoroperatoren

Die Berechnung der Dichtematrix gemäß Gl.(2.4) und damit der Erwartungswerte gemäß Gl.(2.5) vereinfacht sich erheblich bei Berücksichtigung der Symmetrieeigenschaften des betrachteten Systems.Die in der vorliegenden Arbeit untersuchte Relaxation polarisierter Alkaliatome durch Edelgasstöße weist wegen der Isotropie der Stöße Rotationssymmetrie auf. Dies legt eine Darstellung der Dichtematrix mit Hilfe sphärischer Tensoroperatoren nahe.Ein Vorteil einer solchen Darstellung besteht darin,daß eine einheitliche Definition der Stoßquerschnitte und ihre Berechnung möglich wird.Die Methode wurde zuerst von Fano /12/ vorgeschlagen und in der Atomphysik von Omont /13/ und d´Yakonov /14/ angewandt.

Die Entwicklung des Dichteoperators nach Omont lautet bei Beschränkung auf einen einzigen Drehimpulszustand j mit den Unterzuständen m_j

$$\hat{\rho} = \sum_{k,q} \rho_q^{(k)} \; \hat{T}_q^{(k)\dagger} \qquad \begin{matrix} k \leq 2j \\ q = \Delta m_j \end{matrix} \qquad (2.7)$$

Hierin bezeichnen $\hat{T}_q^{(k)}$ die Komponenten eines irreduziblen Tensoroperators der Ordnung k, deren Matrixelemente sich mit Hilfe des Wigner-Eckart-Theorems berechnen lassen:

$$\langle j\, m_j \,|\hat{T}^{(k)}_q|\, j'\, m_j' \rangle = (-1)^{j-m}\sqrt{2k+1}\begin{Bmatrix} j & k & j' \\ -m_j & q & m_j' \end{Bmatrix} \qquad (2.8)$$

Die hier auftretenden 3j-Symbole sind z.B. in /15/ tabelliert. Aus Gl.(2.7) und (2.8) sowie den Orthogonalitätseigenschaften der 3j-Symbole ergibt sich, daß die Entwicklungskoeffizienten $\rho^{(k)}_q$ gleich sind den Erwartungswerten der Tensorkomponenten $\hat{T}^{(k)}_q$ in dem durch ρ beschriebenen Überlagerungszustand

$$\rho^{(k)}_q = Tr\,(\hat{\rho}\hat{T}^{(k)}_q) = \langle \hat{T}^{(k)}_q \rangle \qquad (2.9)$$

Da sich die $\hat{T}^{(k)}_q$ wie die Drehimpulseigenfunktionen $Y^{(k)}_q$ transformieren, ergibt sich damit die folgende anschauliche physikalische Bedeutung für die Entwicklungskoeffizienten $\rho^{(k)}_q$

$\rho^{(o)}_o$ ist proportional der Gesamtbesetzung N im Zustand j

$$\rho^{(o)}_o = \sum_{m_j} \rho_{m_j m_j} \sim N \qquad (2.10)$$

$\rho^{(1)}_q$ sind die 3 Komponenten einer Größe, die "Orientierung" genannt wird und sind proportional den Mittelwerten der Drehimpulskomponenten des Ensembles

$$\rho^{(1)}_0 \sim \langle j_z \rangle \rho^{(o)}_o \quad ; \qquad \rho^{(1)}_{\pm 1} \sim \langle j_{\pm 1} \rangle \rho^{(o)}_o \tag{2.11}$$

$\rho^{(2)}_q$ sind die 5 Komponenten einer Größe, die "Alignment" genannt wird und sind proportional den Mittelwerten von Quadrupolkomponenten

$$\rho^{(2)}_0 \sim \langle 3 j_z - j^2 \rangle \rho^{(o)}_o \quad ; \quad \rho^{(2)}_{\pm 1} \sim \langle j_z j_\pm + j_\pm \rangle \rho^{(o)}_o$$

$$\rho^{(2)}_{\pm 2} \sim \langle j_\pm^2 \rangle \rho^{(o)}_o \tag{2.12}$$

Allgemein bezeichnet man ein Atomensemble mit Multipolkomponenten $\rho^{(k)}_q \neq 0$ für $k>0$ als polarisiert.

Bei inkohärenter Anregung, also verschwindenden Nichtdiagonalelementen $\rho_{m_j m'_j}$, sind nur die Komponenten $\rho^{(k)}_q$ von Null verschieden. Dann ergibt sich mit den Diagonalelementen $\rho_{m_j m_j}$, die den Besetzungen der Subniveaus m_j proportional sind, aus Gl.(2.11) für die Orientierung

$$\rho_o^{(1)} \sim \sum_{m_j} m_j \rho_{m_j m_j} \qquad (2.13)$$

und aus Gl.(2.12) für das Alignment

$$\rho_o^{(2)} \sim \sum_{m_j} |3m_j^2 - j(j+1)| \rho_{m_j m_j} \qquad (2.14)$$

Daraus folgt, daß die Orientierung durch eine asymmetrische Besetzungsverteilung charakterisiert ist, während eine symmetrische Verteilung nur ein Alignment erzeugt.Ist beispielsweise j=3/2 und sind nur die Zustände m_j=+3/2 und +1/2 besetzt, so erhält man eine Orientierung, sind nur m_j=+3/2 und -3/2 besetzt, so erhält man ein Alignment.

Im Falle isotroper Stöße liefert die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix Gl.(2.4) eine unabhängige Relaxation jeder einzelnen Multipolkomponente

$$\dot{\rho}_q^{(k)} = S_q^{(k)} - \Gamma \rho_q^{(k)} - \gamma_q^{(k)} \rho_q^{(k)} \qquad (2.15)$$

Dabei ist die Stoßrelaxationsrate $\gamma^{(k)}$ für den k-ten Multipol unabhängig von q, d.h. eine einzige Zahl.

2.2. Erzeugung und Nachweis atomarer Polarisation

In den in Kap.3 und 4 beschriebenen Experimenten erfolgt die Ausrichtung der Drehimpulse der angeregten Atome durch Resonanzabsorption von polarisiertem Licht aus dem Grundzustand.Die Orientierung $\rho_o^{(1)}$ wird dabei erzeugt durch Anregung mit zirkular polarisiertem Licht (σ-Licht), wobei Photonen-Drehimpuls in Elektronen-Drehimpuls der Atome umgesetzt wird.Wegen der Auswahlregel $\Delta m_j = \pm 1$ für σ-Übergänge erhält man damit eine asymmetrische Besetzungsverteilung auf den Zeeman-Subniveaus des angeregten Zustands.Dies wird am Beispiel des Na-Übergangs $3(^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2})$ in Fig.2a erläutert.Entsprechend wird ein Alignment $\rho_o^{(2)}$ durch Absorption von linear polarisiertem Licht (π-Licht) erzeugt, wobei Photonen-Alignment auf das atomare Ensemble übertragen wird. Die Auswahlregel $\Delta m_j = 0$ für π-Übergänge führt dabei zu einer symmetrischen Besetzungsverteilung auf den Subniveaus (vgl. Fig.2b).

Die Messung der atomaren Polarisation erfolgt über den Polarisationsgrad der reemittierten Fluoreszenz.Dazu muß der senkrecht zum Polarisationsvektor der anregenden Strahlung emittierte Fluoreszenzanteil zur Beobachtung gelangen.Ein Maß für die Orientierung der Drehimpulse ist dann der zirkulare Polarisationsgrad der Fluoreszenz bei Beobachtung in Anregungsrichtung.Ein Maß für das Alignment ist der lineare Polarisationsgrad der Fluoreszenz, wobei üblicherweise senk-

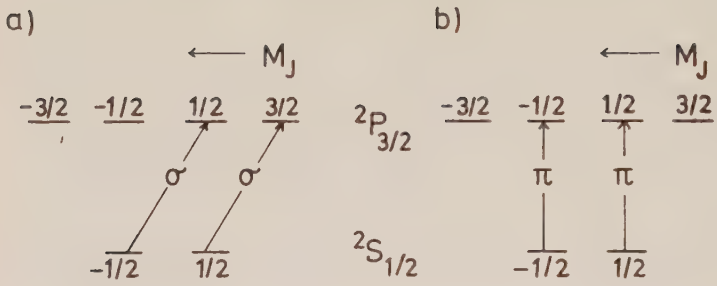

Fig. 2. Erzeugung atomarer Orientierung (a) bzw. Alignment (b) im Na$3^2P_{3/2}$-Zustand durch Absorption von zirkular (σ)- bzw. linear(π)-polarisiertem Licht.

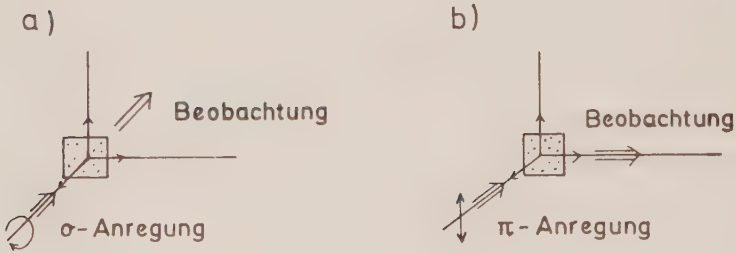

Fig. 3. Geometrie der Versuchsanordnung zur Erzeugung und Beobachtung von Orientierung (a) bzw. Alignment (b) in einem Ensemble angeregter Atome.

recht zur Anregungsrichtung beobachtet wird.Anregungs- und Beobachtungsgeometrie sind für beide Fälle in Fig.3 dargestellt.

Der quantitative Zusammenhang zwischen Polarisation der Fluoreszenz und den atomaren Multipolkomponenten ergibt sich mittels Gl.(2.6), wenn man dort die Komponenten des elektrischen Dipoloperators $\hat{\underline{d}}$ durch diejenigen des Drehimpulsoperators $\hat{\underline{j}}$ ersetzt /16/.Definiert man den zirkularen Polarisationsgrad über die Intensitäten für σ_+-Licht und σ_--Licht wie üblich durch

$$P^{\sigma} := \frac{I_{\sigma_+} - I_{\sigma_-}}{I_{\sigma_+} + I_{\sigma_-}} \tag{2.16}$$

so erhält man für die Orientierung pro Atom (mikroskopische Orientierung)

$$\langle j_z \rangle = \frac{\rho_o^{(1)}}{\rho_o^{(o)}} = \frac{1}{2} P^{\sigma} \tag{2.17}$$

Entsprechend kann man einen linearen Polarisationsgrad definiern durch

$$P^{\pi} := \frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{I_{\sigma} + I_{\pi}} \tag{2.18}$$

wobei I_π die Intensität für π-Licht bezeichnen sowie $I_\sigma := (I_{\sigma_+} + I_{\sigma_-})/2$ und erhält damit für das Alignment pro Atom (mikroskopisches Alignment)

$$\langle 3j_z^2 - j^2 \rangle = \frac{\rho_o^{(2)}}{\rho_o^{(o)}} = \frac{4P^\pi}{3 + P^\pi} \qquad (2.19)$$

3. Umverteilung von Resonanzstrahlung

3.1. Historischer Rückblick

Die Kenntnis darüber, wie ein Atom Strahlung streut, ist wichtig in der Astrophysik, insbesondere für das Verständnis des Strahlungsaustauschs in Frauenhoferlinien /17/.Die Bildung von Spektrallinien aus optisch dicken Schichten wird bereits in älteren Arbeiten /18/,/19/ zusammenfassend dargestellt.Die Physik des Streuprozesses unter Beteiligung von Stößen wird erstmalig von Omont, Smith und Cooper /20/ genauer untersucht; ungefähr gleichzeitig wird der Einfluß hoher Strahlungsfelder von Huber /21/ behandelt.Diese Arbeiten beschränken sich jedoch noch auf den nahresonanten Bereich, bei Resonanzabweichungen klein gegen die reziproke Stoßdauer (Bereich der Stoßapproximation).Erste Streuexperimente mit einem gepulsten Farbstofflaser in den quasistatischen Flügeln der Strontium Resonanzlinie /2/ erforderten eine Erweiterung der Theorie auf den Bereich außerhalb der Stoß-approximation; diese Erweiterung wurde in Arbeiten von Nienhuis und Schuller /22/ durchgeführt,die sich jedoch zunächst auf nichtentartete 2-Niveau-Systeme beschränkten.

Erst in neueren Arbeiten wird auch der Einfluß der Zeeman- und Multiplett-Struktur der Niveaus bei Anregung in den Linienflügeln näher untersucht.Burnett und Cooper /23/ (theoretisch) sowie Burnett u. Thomann /5/ (experimentell

am Sr) beschränkten sich auf das Depolarisationsproblem. Demgegenüber werden erstmals bei Nienhuis theoretisch /24/ und bei Kroop u. Behmenburg /25/,/26/,/27/ experimentell am Na die Effekte der Spin-Bahn-Aufspaltung und der Hyperfeinwechselwirkung mit einbezogen.

Die fogenden Abschnitte enthalten 1) eine zusammenfassende Darstellung und quantitative Interpetation der bisherigen experimentellen Ergebnisse am Na-Resonanzübergang $3S \leftrightarrow 3P$ /25/,/26/,/27/ sowie 2) einen quantitativen Vergleich der Messungen mit numerischen Rechnungen auf der Grundlage der Theorie in Faktorisierungsapproximation.Die Untersuchungen wurden bei Laserfeldstärken durchgeführt, bei denen Besetzung von 3P sowie a.c. Starkeffekt vernachlässigbar sind.

3.2. Umverteilung nahe der Na(3S↔3P)-Resonanz

3.2.1. Rayleighstreuung (RS) ohne Stöße

Wird in Abwesenheit von Stößen monochromatisches Licht ω_L hinreichend geringer Intensität in der Nähe des Na(3S↔3P) Überganges gestreut, so reflektieren Spektrum und Polarisation der Streustrahlung Feinstruktur (FS) und Hyperfeinstruktur (HFS) der beiden Niveaus (Fig.4).
Der Grundzustand 3S spaltet in 2 HFS-Komponenten F=1,2 auf mit 1772 MHz Abstand, der vergleichbar ist zur Dopplerbreite ≈ 2 GHz bei etwa 400 K.Demgemäß enthält das Streuspektrum (Fig.5) neben der Rayleighlinie noch 2 Ramanlinien (Stokes oder Antistokes, je nachdem die Streuung an F=1 oder F=2 Atomen stattfindet).Allerdings sind die drei Linien wegen der Dopplerverbreiterung nur schwach getrennt; über sie wird daher im Experiment (vgl. 3.6.1.) spektral integriert.Die Multiplettaufspaltung des angeregten 3 P-Zustandes hingegen äußert sich nur indirekt über den linearen Polarisationsgrad P^{π}_{RS} der RS-Linie, der mit der Anregungsfrequenz ω_L variiert.

Polarisationsfunktion $P^{\pi}_{RS}(\omega_L)$

Die Grobstruktur des $P^{\pi}_{RS}(\omega_L)$-Verlaufs läßt sich qualitativ mit Hilfe des klassischen Modells des strahlenden Elektrons voraussagen, dessen Bahndrehimpuls $\underline{L}$ durch die Spin-Bahn- und Hyperfein-Wechselwirkung Präzessionsbewegungen ausführt.

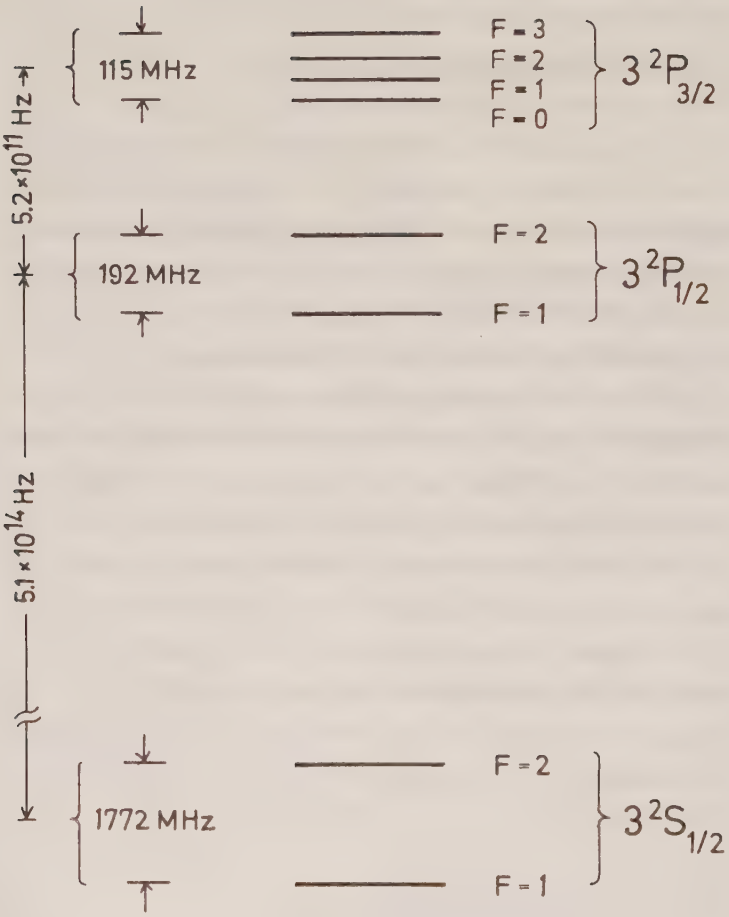

Fig. 4. Hyperfeinzustände von $^{23}Na3(^2S_{1/2}, ^2P_{1/2}, ^2P_{3/2})$ /51/.

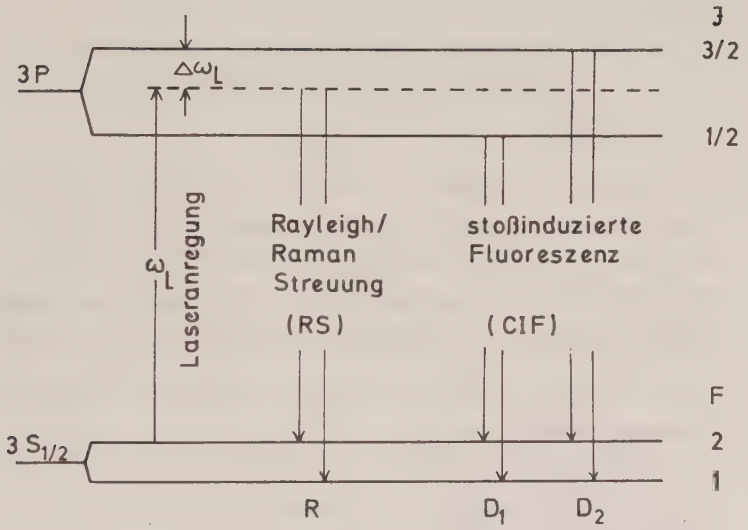

Fig. 5. Rayleigh/Ramanstreuung (RS) und stoßinduzierte Fluoreszenz (CIF) bei Laseranregung in der Nähe des Na D-Multipletts.

P^{π}_{RS} wird dabei wesentlich bestimmt durch die Präzessionsperiode im Vergleich zur Lebesdauer des Elektrons beim Streuprozeß.

1) $\Delta\omega_L \gg \Delta\Omega_{FS}$

Bei Resonanzabweichungen $\Delta\omega_L := |\omega_L - \Omega_o|$ groß gegen die Feinstrukturaufspaltung $\Delta\Omega_{FS}$ ist die Präzessionsperiode $\Delta\Omega_{FS}^{-1}$ von $\underline{L}$ um $\underline{J}$ groß gegen die Lebensdauer $\Delta\omega_L^{-1}$ des P-Elektrons. Das bedeutet, $\underline{L}$ ruht während dieser Zeit, d.h., der lineare Polarisationsgrad P^{π}_{RS} der RS bei Anregung mit linearpolarisiertem Licht ist gleich dem der Strahlung eines klassischen Dipoloszillators, nämlich 1.

2) $\Delta\omega_L \approx \Delta\Omega_{FS} \gg \Delta\Omega_{HFS}$

In diesem Fall ist die Präzessionsperiode $\Delta\Omega_{FS}^{-1}$ von $\underline{L}$ um $\underline{J}$ vergleichbar mit der Lebensdauer $\Delta\omega_L^{-1}$ des Elektrons; die Rotation des Oszillators führt dabei zu einer Verminderung der Polarisation der emittierten Strahlung.Der Effekt der Hyperfein-Kopplung auf den Streuprozess ist hier vernachlässigbar.Für die Anregung auf den FS-Übergängen ergibt sich aus der Zeemanstruktur der beteiligten Niveaus und den zugehörigen Dipol-Übergangswahrscheinlichkeiten gemäß Gln. (2.6) und (2.18)

$$P^{\pi}_{RS}({}^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}) = 3/5 \; ; \qquad P^{\pi}_{RS}({}^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}) = 0$$

3) $\Delta\omega_L \approx \Delta\Omega_{HFS}$

Wird schließlich $\Delta\omega_L \approx \Delta\Omega_{HFS}^{-1}$, so findet während der Lebensdauer zusätzliche Präzession von J um F statt, was eine weitere Depolarisation zur Folge hat.Speziell:

$$P_{RS}^{\pi}(^2S_{1/2}, F=1 \rightarrow {}^2P_{3/2}) = 3/25$$

Der Übergangsbereich von 2) nach 3) wird in der vorliegenden Arbeit experimentell untersucht (3.6.1.) und mit Rechnungen auf der Grundlage der Redistributionstheorie /24/ verglichen.

Der Grobstruktur von $P_{RS}^{\pi}(\omega_L)$ überlagern sich feinere Details, die durch Interferenzen der ω_L-abhängigen Streuamplituden bei Anregung in der Nähe der FS- und HFS-Frequenzen bedingt sind.Dies ist eine Konsequenz der ganz allgemein gültigen Proportionalität der RS-Intensität I_{jk} zum Quadrat der atomaren Polarisierbarkeit mit Tensorkomponenten α_{jk}

$$I_{jk}(\omega_L) \sim \left\{\alpha_{jk}(\omega_L)\right\}^2 \qquad (3.1)$$

wo in Störungsrechnung 2. Näherung und Dipolnäherung /28/ α_{jk} sich darstellt durch Superposition der Streuamplituden aller beteiligten Zwischenzustände e:

$$\alpha_{jk}(\omega_L) \sim \sum_e \frac{\langle g|d_k|e\rangle\langle e|d_j|g\rangle}{\Omega_{ge} - \omega_L} \qquad (3.2)$$

Dabei bezeichnen die $\langle\rangle$ Komponenten der Dipolmatrixelemente für die Übergänge $g \to e$ mit den Übergangsfrequenzen $\Omega_{ge} = (E_e - E_g)/\hbar$.

Bei Streuung in der Nähe des Feinstruktur-Doubletts $\Omega_1 := \Omega(^2S_{1/2} \to {}^2P_{1/2})$; $\Omega_2 := \Omega(^2S_{1/2} \to {}^2P_{3/2})$ liefern die Amplituden der beiden Zwischenzustände $e = \{^2P_{1/2}; {}^2P_{3/2}\}$ einen i.a. vergleichbaren Beitrag zur Summe in Gl. (3.2) und daher einen nicht vernachlässigbaren Interferenzterm im Ausdruck für die Streuintensität Gl.(3.1).Bezeichnen $I_\perp$ bzw. $I_\parallel$ die Intensitäten mit Polarisation $\parallel$ bzw. $\perp$ zur Laserpolarisation ,so ergibt sich unter Vernachlässigung der HFS bei Beobachtung $\perp$ zur Anregungsrichtung

$$I_\perp \sim \left| \frac{1}{\omega_L - \Omega_2} - \frac{1}{\omega_L - \Omega_1} \right|^2 \qquad (3.3)$$

$$I_\parallel \sim \left| \frac{2}{\omega_L - \Omega_2} + \frac{1}{\omega_L - \Omega_1} \right|^2$$

Aus Gl.(3.3) folgt, daß für $I_\perp$ die beiden Amplituden kon-

struktiv innerhalb und destruktiv außerhalb des Doubletts interferieren; für $I_{\parallel}$ gilt das Gegenteil.Die Interferenz ist vollständig destruktiv an der Stelle $\bar{\Omega} := (2\Omega_1 + \Omega_2)/3$. Bei der üblichen Definition der Polarisation des Streulichts durch $P^{\pi} := (I_{\parallel} - I_{\perp})/(I_{\parallel} + I_{\perp})$ ergibt sich aus Gl. (3.3)

$$P^{\pi}_{RS}(\omega_L) = \frac{|(\omega_L - \bar{\Omega})/a|^2 - 1}{|(\omega_L - \bar{\Omega})/a|^2 + 1} \qquad (3.4)$$

wo $a := 1/3(\Omega_2 - \Omega_1)$ ist.

Gl.(3.4) repräsentiert eine glockenförmige, zu $\bar{\Omega}$ symmetrische Kurve mit $P^{\pi}_{RS} = -1$ bei $\bar{\Omega}$; für $|\omega_L - \bar{\Omega}| \gg \Omega_{FS}$ wird $P^{\pi}_{RS} = 1$, in Übereinstimmung mit dem Resultat der qualitativen Überlegung.

Die Polarisationsfunktion Gl.(3.4) wurde erstmals von Tam und Au /29/ hergeleitet und experimentell am Na-Übergang $3S \rightarrow 3P$ quantitativ bestätigt (vgl.Fig.(6)).Interferenz der Streuamplituden der HFS-Zustände von $^2P_{3/2}$ wurde bisher experimentell nicht nachgewiesen; der Nachweis erfordert Doppler-freie Anregung und Beobachtung der Streustrahlung.

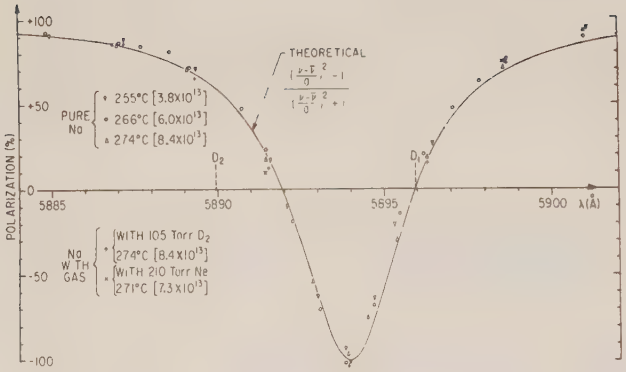

Fig. 6. Polarisation der Rayleighstreuung als Funktion der Laserwellenlänge.Der Meßfehler beträgt typisch 3%. Angaben der Na-Dichte in cm^{-3}.Für die Rechnung wurden folgende Parameter für den Na-Fall benutzt: $\tilde{\nu}$= 1.6961 cm^{-1} und a = 5.732 cm^{-1}.Ref./29/.

3.2.2. Stoßinduzierte Fluoreszenz (CIF)

Bei Anwesenheit von Stößen enthält das Spektrum der nahresonant zum Na($3S \leftrightarrow 3P$)-Übergang gestreuten Strahlung neben der RS-Linie noch die beiden CIF-Komponenten D_1 und D_2 mit HFS entsprechend den Subniveaus F=1,2 von $^2S_{1/2}$ (Fig.5).Anders als die RS-Linie sind die CIF-Linien stoßverbreitert.Die Besetzung der FS-Niveaus $^2P_{1/2,3/2}$ erfolgt entweder direkt beim Einzelstoß durch Absorption in den Flügeln der beiden D-Linien (vgl.4.2.2.) oder, bei resonanter Anregung ($\Delta\omega_L \approx \Delta\omega_D$) indirekt durch Stoßüberführung $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ während der spontanen Lebensdauer.

Das Intensitätsverhältnis von CIF- zu RS-Anteil wird durch das Ratenverhältnis von Stößen zu spontanem Zerfall bestimmt. Bei resonanter Anregung und Anzahldichten von 10^{10}cm^{-3} für Na und 10^{17}cm^{-3} für Edelgas ist typisch $I_f/I_R \approx 1$.Die Polarisation der CIF-Komponenten D_1, D_2 hängt in komplizierter Weise von den Pumpbedingungen und der Stoßrelaxation zwischen den Zeeman-Zuständen der HFS-Niveaus von $^2P_{1/2,3/2}$ ab; der Polarisationsgrad ist infolge depolarisierender Stöße gegenüber dem der resonanten RS-Linien reduziert.

Ähnlich wie bei der RS, jedoch teilweise aus anderen Gründen, ist auch für die CIF eine starke Variation der Polarisation mit der Anregungsfrequenz ω_L zu erwarten.

3.2.2.1. Resonante Anregung $\Delta\omega_L \approx \Delta\omega_D$

Zwei Effekte sind für diesen Bereich charakteristisch:

1) v-selektive Präparation der FS-Zustände von 3P

Es werden Atome mit Geschwindigkeitskomponenten $v_z=((\omega_L-\Omega_{ei})/\Omega_{ei})c$ in Laserrichtung selektiert.Durch Variation der Laserfrequenz ω_L innerhalb der Dopplerverteilung wird somit die Messung v-abhängiger Stoßquerschnitte mittels einfacher Zellenexperimente möglich.Die Methode wurde am Beispiel der FS-Überführung $Na3(^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2})$ durch Edelgasstöße demonstriert /30/.Die v-Abhängigkeit der Stoßdepolarisation wurde bisher noch nicht untersucht.

2) Optisches Pumpen zwischen den Subniveaus von 3S

Die Pumpeffizienz wird merklich bei Laser-Intensitäten oberhalb 10 $\mu W/mm^2$.Pumpen zwischen den HFS-Niveaus F=1,2 führt zu einer Verschmälerung der CIF-Anregungsfunktion $I_{CIF}(\Delta\omega_L)$.Dies ist qualitativ folgendermaßen verständlich: Ist ω_L resonant zu einem der beiden von F=1,2 ausgehenden HF-Übergänge nach 3P, so wird dieses Subniveau aufgrund der Dopplerverteilung stark entvölkert und die Absorption auf diesem Übergang entsprechend reduziert.Bei Anregung in der Mitte zwischen den beiden Übergängen ist dagegen die Entvölkerung gering und die Absorption groß.Die resultierende Breite von $I_{CIF}(\Delta\omega_L)$ ist daher ungefähr $1/2\Delta\omega_{HFS}$ und damit um etwa den Faktor 4 geringer als die Gesamtbreite $\approx \Delta\omega_{HFS} + \Delta\omega_D$ ohne Pumpen.

Über einen Vergleich von $I_{CIF}(\Delta\omega_L)$-Messungen im Bereich des Überganges $^2S_{1/2} \leftrightarrow {}^2P_{3/2}$, $\Delta\omega_L$ maximal $5\Delta\omega_D$, mit berechneten, durch F=1 ↔ F=2 Pumpen modifizierten Absorptionsprofilen wurde bereits in /26/ berichtet (Fig.13).Die gefundenen Abweichungen sind u.a. durch eine abnehmende Pumpeffizienz im Übergangsbereich zu den Lorentz-Flügeln zu erklären.

Streuung von polarisiertem Resonanzlicht an unpolarisierten $^2S_{1/2}$-Atomen führt auch zu Umverteilung zwischen den Zeeman-Subniveaus, d.h. Polarisation dieser $^2S_{1/2}$-Atome.Absorption polarisierter Photonen des gleichen Lichtfeldes aus den polarisierten $^2S_{1/2}$-Zuständen erhöht allgemein die Polarisation der $^2P_{1/2}$,$^2P_{3/2}$-Zustände und damit die Polarisation der daraus emittierten Fluoreszenz.Über Meßergebnisse bei Anregung mit linear polarisiertem Licht innerhalb der Dopplerbreite des $^2S_{1/2} \leftrightarrow {}^2P_{3/2}$-Übergangs und Vergleich mit Rechnungen wurde ebenfalls bereits berichtet /26/ (vgl.3.6.1.).

3.2.2.2. Anregung in den stoßbestimmten Linienflügeln

Mit Doppler-begrenzter Auflösung erscheint im Streuspektrum neben den D_1- und D_2-CIF-Komponenten die RS-Linie getrennt. Bei Anregung in den Lorentzflügeln+) $\Delta\omega_L \ll \tau_c^{-1}$ einer der beiden D-Linien partizipieren Atome aller Geschwindigkeitsklassen und Stoßparameter am Absorptionsprozess.Zwischen

+) τ_c Stoßdauer

Absorption und Reemission erfolgen Stöße mit allen möglichen Stoßparametern.Daher liefert die Messung der über die homogene Breite integrierte Linienintensitäten der D_1- bzw. D_2-CIF eine Möglichkeit zur Bestimmung totaler Stoßquerschnitte.Die über geeignete Bilanzgleichungen definierten Querschnitte sollten, bei Anregung im Bereich der Lorentzflügel, ω_L-unabhängig sein.Dieses Verfahren wird in 4. zur Bestimmung der Querschnitte für FS-Überführung, $^2P_{3/2}$-Disalignment und $^2P_{1/2}$-Desorientierung angewandt.

Demgegenüber findet im Bereich der quasistatischen Flügel $\Delta\omega_L \gg \tau_c^{-1}$ Absorption von ω_L während des Stoßes bei kleinen, selektiven Kernabständen R_L statt, bei denen $\hbar\omega_L(R_L)$ gleich ist der Potentialdifferenz $V_i(R_L)-V_e(R_L)$ der interatomaren Potentiale der Stoßpartner. Nach vollendetem Stoß wird die CIF dann selektiv von Atomen mit kleinen Stoßparametern $b \lesssim R_L$ und damit großer Stoßwahrscheinlichkeit $P(b,R_L)$ reemittiert.Die Änderung des CIF-Spektrums mit der Anregungsfrequenz ω_L enthält dann im Prinzip zahlreiche Informationen über die Stoßdynamik solcher Halbstöße.Dieser Grundgedanke wird auf die Untersuchung der Relaxation von Na3^2P-Atomen durch Stöße mit Edelgasen in 4.2.2. angewandt.

Speziell für die Polarisation der umverteilten CIF ist damit qualitativ folgendes Frequenzverhalten zu erwarten: Der Polarisationsgrad sollte im Bereich der Lorentzflügel konstant sein und zum quasistatischen Bereich hin abfallen. Aufgrund einer anschaulichen Überlegung /3/ sollte ganz

allgemein bei quasistatischer Absorption und adiabatischer Umorientierung der Drehimpulse während des Stoßes die reemittierte CIF vollständig depolarisiert sein.In /31/ wird dagegen gezeigt, daß diese Voraussage zwar nicht allgemein, aber im Spezialfall der Linearpolarisation der CIF aus Zuständen mit ungeradem Drehimpuls gültig ist.Dieser Fall soll daher am Beispiel der π-Polarisation der Na D_2-CIF bei Anregung im Bereich zwischen den beiden D-Linien experimentell untersucht werden (3.6.2.).

3.3 Theorie der Umverteilung, Faktorisierungs-Approximation

Die in mehreren Arbeiten von Nienhuis u. Schuller /22/ und Nienhuis /4/,/24/ entwickelte Theorie behandelt Atome und Strahlungsfeld quantenmechanisch; sie basiert auf der Berechnung der Korrelationsfunktion des strahlenden Dipols in Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld und umgebenden Störatomen.Wesentliches Merkmal ist die vereinfachende Annahme, daß die Dichtematrix des Systems zu allen Zeitpunkten der Absorption eines Photons in einen Anteil ρ_S für das Strahler-Ensemble und einen Anteil ρ_P^{eq} für das Bad der Störatome faktorisiert

$$\rho = \rho_S \cdot \rho_P^{eq} \tag{3.5}$$

Die Faktorisierungs-Approximation (FA) ist gerechtfertigt, falls die Stoßdauer τ_c viel kleiner ist als das Zeitintervall für den Photon-Streuprozeß $|\omega_L - \Omega_o|^{-1}$ .Im Gültigkeitsbereich der Stoßapproximation (Impact-Bereich) ist diese Voraussetzung sicher erfüllt.In den weiten Flügeln jedoch, wo $|\omega_L - \Omega_o| \gg \tau_c^{-1}$ ist, liefert die FA keine präzise Voraussage über Spektrum und Polarisation der CIF.In diesem Fall wird Fluoreszenz von Atomen emittiert, die während des Stoßes angeregt wurden.Die Dichtematrix des Störer-Bades weicht dann vom Gleichgewichtswert ρ_P^{eq} ab, sodaß die Faktorisierung Gl.(3.5) keine gute Näherung während des Stoßes ist.

Ziel der experimentellen Untersuchung in 3.6. ist es, die FA im Impact-Bereich und Übergangsbereich $|\omega_L - \Omega_o| \approx \tau_c^{-1}$ zu testen. Dazu werden zunächst in 3.3.1. und 3.3.2. die in /24/ hergeleiteten allgemeinen Resultate der FA dargestellt und diskutiert.

3.3.1. Streuspektrum

Der Zustand des streuenden Atoms vor und nach dem Streuprozess sei durch $|i\rangle$ und $|f\rangle$ bezeichnet; die angeregten Multiplett-Zwischenzustände mit $|e\rangle$, $|e'\rangle$,.. .Frequenz, Wellenvektor und Polarisation des einfallenden und des gestreuten Photons seien ω_L, $\underline{k}_L$, $\underline{\varepsilon}_L$ bzw. ω_S, $\underline{k}_S$, $\underline{\varepsilon}_S$. Die spektrale Verteilung der Streustrahlung, die pro Raumwinkel- und Volumeneinheit aus einem atomaren Dampf der Dichte n_A innerhalb eines Störteilchenbades emittiert wird, stellt sich dar durch /24/

$$R(\omega_S, \underline{\varepsilon}_S) = n_A \frac{\omega_S^4}{2\pi\hbar^2 c^4} \int d\omega_L \; I(\omega_L) \qquad (3.6)$$

$$\times \int dv \; W_M(v) \; F_o(\omega_S - \underline{k}_S \underline{v}, \underline{\varepsilon}_S; \; \omega_L - \underline{k}_L \underline{v}, \underline{\varepsilon}_L)$$

wo $I(\omega_L)$ die spektrale Intensität der einfallenden Strahlung und

$$W_M(v) = (\beta M/2)^{3/2} \exp(-1/2 \; \beta M v^2) \qquad (3.7)$$

$$\beta = (kT)^{-1}$$

die Maxwell-Verteilung der Geschwindigkeiten der strahlenden Atome der Masse M bedeutet.

Da in der FA der Photonen-Streuprozess durch die zeitlich getrennte Aufeinanderfolge von Absorption, Relaxation und Emission beschrieben wird, ist die Redistributionsfunktion F_o darstellbar durch die diesen Elementarprozessen entsprechenden Größen bzw.Funktionen:

Absorptionsprofile $g_{ei}(\omega_L)$; $\int g_{ei}(\omega_L)d\omega_L = 1$

Relaxationsmatrix $\tilde{\gamma}_k$

Emissionsprofile $g_{ef}(\omega_S)$; $\int g_{ef}(\omega_S)d\omega_S = 1$

Die Nichtdiagonalelemente $(\tilde{\gamma}_k)_{ee'}$ der Relaxationsmatrix bestimmen die Raten für Stoßübertrag des k-ten Multipols vom Zustand $|e\rangle$ in den Zustand $|e'\rangle$.Die Diagonalelemente $(\tilde{\gamma}_k)_{ee}$ sind die Raten für Relaxation des k-ten Multipols im Zustand $|e\rangle$ durch Stoß oder spontanen Zerfall.Anregungs- und Beobachtungsgeometrie werden durch sphärische Matrizen $S_q^{(k)}$ beschrieben (vgl.A2), die in /4/ definiert sind.

Die analytische Darstellung von F_o vereinfacht sich durch Unterteilung in zwei unterschiedliche Bereiche der Resonanzabweichung der Anregung $\Delta\omega_L$ im Vergleich zur homogenen Linienbreite γ_H.

$\underline{\Delta\omega_L \lesssim \gamma_H}$

Bei Anregung auf dem Übergang $\Omega_{e_o i}$ besteht das Streuspektrum aus einer Serie von CIF-Linien bei den Mittenfrequenzen Ω_{ef}. Der stoßverbreiterten CIF-Linie bei $\Omega_{e_o i}$ ist außerdem ein RS-δ-Peak überlagert. Bei Annahme, daß der Linienabstand $\omega_{ee'}$ groß gegen γ_H ist, ergibt sich die über alle emittierten Frequenzen ω_S innerhalb γ_H integrierte Linienintensität auf dem Übergang $|e\rangle \rightarrow |f\rangle$ proportional zu

$$s(e\underline{\varepsilon}_S \leftarrow e_o\underline{\varepsilon}_S) = \frac{4\pi^2 n_i}{2j_i+1} |\langle e_o \| \mu \| i\rangle|^2 |\langle e \| \mu \| f\rangle|^2 (-)^{j_{e_o}+j_i-j_e-j_f}$$

$$\times \sum_{kq} \begin{Bmatrix} 1 & k & 1 \\ j_{e_o} & j_i & j_{e_o} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & k & 1 \\ j_e & j_f & j_e \end{Bmatrix} \underline{\varepsilon}_L^* S_q^{k+} \underline{\varepsilon}_L \; \underline{\varepsilon}_S^* S_q^k \underline{\varepsilon}_S$$

$$\times (\tilde{\gamma}_k^{-1})_{ee_o} \; g_{e_o i}(\omega_L) \qquad (3.8)$$

wo n_i die Besetzungsdichte im Zustand $|i\rangle$ bezeichnet.

$\underline{\Delta\omega_L \gg \gamma_H}$

In diesem Fall enthält das Streuspektrum getrennt eine RS-Linie bei der Frequenz $\omega_S \simeq \omega_L$ sowie eine Serie von CIF-Linien bei den Frequenzen $\omega_S \simeq \Omega_{ef}$. Die Intensität der RS-Linie ergibt sich proportional zu

$$r(\underline{\varepsilon}_S;\ \underline{\varepsilon}_L) =$$

$$\frac{2\pi n_i}{2j_i+1} \sum_{kq} \left| \sum_e \frac{\langle e\ \mu\ i\rangle \langle e\ \mu\ f\rangle^{\dagger}}{\omega_L - \Omega_{ei}} (-)^{j_e+j_i+k+1} \right.$$

$$\left. \times\ \underline{\varepsilon}_S^{*} S_q^{k\dagger} \underline{\varepsilon}_L \begin{Bmatrix} 1 & k & 1 \\ j_f & j_e & j_i \end{Bmatrix} \right|^2 \qquad (3.9)$$

Die CIF-Linien haben Intensitäten proportional zu

$$f(e\underline{\varepsilon}_S;\ \underline{\varepsilon}_L) =$$

$$\frac{2\ n_i}{2j_i+1} \sum_{e'} \sum_{kq} |\langle e' \| \mu \| i\rangle|^2 |\langle e \| \mu \| f\rangle|^2 (-)^{j_{e'}+j_i-j_e-j_f}$$

$$\times \begin{Bmatrix} 1 & k & 1 \\ j_{e'} & j_i & j_{e'} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & k & 1 \\ j_e & j_f & j_e \end{Bmatrix} \underline{\varepsilon}_L^{*} S_q^{k\dagger} \underline{\varepsilon}_L \ \underline{\varepsilon}_S^{*} S_q^{k} \underline{\varepsilon}_S$$

$$\times \left[(\tilde{\gamma}_k^{-1})_{ee'} 2\pi\ g_{e'i}(\omega_L) - \delta_{ee'}(\omega_L - \Omega_{ei})^{-2} \right] \qquad (3.10)$$

3.3.2. Anregungsfunktionen

In Gl.(3.9) für die RS stellt der Ausdruck unter der e-Summe die Tensorkomponenten der Dipol-Polarisierbarkeit dar; er ist im wesentlichen identisch mit Gl.(3.2).Die Multiplettstruktur des Zwischenzustandes $|e\rangle$ führt zu dem in 3.2.1. diskutierten Verhalten der Polarisationsfunktion $P^{\pi}_{RS}(\omega_L)$.

In Gl.(3.10) für die aus $|e\rangle$ emittierte CIF beschreibt Term 1 in [ ] die Bildung der Multipole von e über die verschiedenen Kanäle $|i\rangle \rightarrow |e\rangle \rightarrow |e'\rangle$ durch Absorption von ω_L in den Flügeln der Übergänge Ω_{ei} und anschließenden Stoßübertrag oder Relaxation; Term 2 in [ ] beschreibt die aus $|e\rangle$ emittierte RS, wobei das Vorzeichen aus Energiegründen negativ ist.

Aus Gln.(3.9),(3.10) folgt, daß innerhalb des Lorentz-Bereichs eines Absorptionsprofils $g_{ei}(\omega_L)$ das Verhältnis der über alle Polarisationsrichtungen $\underline{\varepsilon}_S$ integrierten Intensitäten von RS und CIF ω_L-unabhängig ist.Weiter sieht man, daß hier auch die Polarisation der beiden Streulicht-Komponenten konstant ist.Dies ist jedoch anders außerhalb des Lorentz-Bereichs, wo allgemein $P^{\pi}_{CIF}(\omega_L)$ variiert.Eine Analyse /4/ ergibt, daß $P^{\pi}_{CIF}(\omega_L)$ mit ω_L zu oder abnimmt, jenachdem in $g_{ei}(\omega_L) \sim \Delta\omega_L^{-\alpha}$ der Exponent α kleiner oder größer 2 ist.

3.4. Anwendung der Theorie auf Na(3S ↔3P)

Die in 3.3. dargestellten Ergebnisse der FA sollen am Na--Übergang (3S ↔3P) experimentell getestet werden.Dazu werden untersucht 1) Rayleigh-Streuung und D_2-CIF bei Anregung im Bereich der Doppler-verbreiterten und HF-aufgespaltenen D_2-Linie; 2) D_1- und D_2-CIF bei Anregung in den stoßbestimmten Flügeln der beiden D-Linien.

Die Zwischenzustände $|e\rangle, |e'\rangle, ..$ in Gln.(3.8)-(3.10) werden realisiert durch die FS-Niveaus J_e=1/2,3/2 und die HFS-Niveaus F_e=0,1,2,3 von $^2P_{3/2}$ bzw. F_e=1,2 von $^2P_{1/2}$.Außerdem ist noch über die beiden Ausgangszustände F =1,2 von $^2S_{1/2}$ zu summieren.Die gegenüber der Dopplerbreite ≈ 2 GHz kleine HFS-Aufspaltung ≈200 MHz von $^2P_{3/2}$ wird bei der Berechnung der Resonanznenner vernachlässigt.Die Ausreduktion der Matrixelemente für die HF-Übergänge sowie die Auswertung der 6j-Symbole sind in Anhang A4 aufgelistet.

3.4.1. Anregung im Dopplerkern der D_2-Linie

Rayleigh-Streuung

Im Experiment (3.6.1.) ohne Fremdgas liefert die CIF, Gl. (3.10), keinen Beitrag zur Streustrahlung.Bei der numerischen Berechnung wurde als Schnittstelle für den Übergang von resonanter ($\Delta\omega_L < \gamma_H$, Gl.(3.8)) zu nichtresonanter ($\Delta\omega_L > \gamma_H$,Gl.(3.9)) Anregung $\Delta\omega_L = 5\Gamma^{-1}$($\Gamma$ spontane Zerfalls-

rate) gewählt.Die Faltung mit der Maxwell-Verteilung gemäß Gln.(3.6),(3.7) erfolgte bis $\omega_L - k_L v = 5\,\Delta\omega_D$.Schließlich wurde noch über die 3 anregenden Lasermoden (3.5.) summiert.

D_2- stoßinduzierte Fluoreszenz

Im Experiment 3.6.2. mit Fremdgas wird die Gesamtintensität der im Bereich der Dopplerbreite + HF-Aufspaltung des ($^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$)-Übergangs emittierten Strahlung gemessen, d.h. es wird über D_2-CIF- und RS-Komponente integriert.Bei der numerischen Auswertung des D_2-CIF-Beitrages gemäß Gln. (3.8),(3.10) ergibt sich die Schwierigkeit, daß die Transfer- und Relaxationsraten $(\tilde{\gamma}_k^{-1})_{ee'}$ zwischen und innerhalb der 3P-Subniveaus größtenteils unbekannt sind.Der ω_L-abhängige lineare Polarisationsgrad P_2^π der D_2-CIF wurde daher näherungsweise mittels eines phänomenologischen Stern-Vollmer-Ansatzes

$$P_2^\pi(\omega_L) = \frac{P_{2o}^\pi(\omega_L)}{A + B\, n_P\, \sigma_D(\omega_L)} \qquad (3.11)$$

berechnet.In Gl.(3.11) bezeichnen $P_{2O}^\pi(\omega_L)$ den Polarisationsgrad in Abwesenheit depolarisierender Stöße, $\sigma_D(\omega_L)$ den i.a. $v(\omega_L)$-abhängigen Stoßquerschnitt sowie A,B numerische Konstanten.$P_{2O}^\pi(\omega_L)$ wird mittels Gln.(3.8), (3.10) berechnet; der Nenner von Gl.(3.11) wird durch Anpassung an den im Bereich $\Delta\omega_L \gtrsim \Delta\omega_D$ konstanten experimentellen Wert P_2^π erhalten.Dieses Verfahren setzt voraus, daß $\sigma_D(\omega_L)$ im Bereich $\Delta\omega_L \lesssim \Delta\omega_D$ näherungsweise konstant ist.

3.4.2. Anregung in den stoßbestimmten Linienflügeln

In diesem Bereich $\Delta\omega_L \gg \Delta\omega_D$ ist die HF-Aufspaltung $\Delta\Omega_{HFS} \approx \Delta\omega_D \approx 2$ GHz vernachlässigbar. Das 3P-Multiplett hat daher die beiden FS-Komponenten $J_e = 1/2$, $3/2$. Ausgangs- und Endzustand sind beide gleich dem $^2S_{1/2}$- Zustand, sodaß $J_i = J_f = 1/2$ ist. Die zugehörigen Matrixelemente $(\tilde{\gamma}_k^{-1})_{ee'}$ sind in Anhang A3 tabelliert. Die Absorptions-Profilfunktionen der D_1- und D_2-Linien seien mit $g_1(\omega_L)$ bzw. $g_2(\omega_L)$ bezeichnet. Bei Summation über die beiden Polarisationsrichtungen der Streustrahlung $\underline{\varepsilon}_S \parallel \underline{\varepsilon}_L$ und $\underline{\varepsilon}_S \perp \underline{\varepsilon}_L$ ergibt sich dann aus Gl. (3.10) für die Anregungsfunktionen der D_1-CIF und D_2-CIF

$$I_1(\omega_L) \sim (\tilde{\gamma}_o^{-1})_{1/21/2} g_1(\omega_L) + \sqrt{2}(\tilde{\gamma}_o^{-1})_{1/23/2} g_2(\omega_L) - \frac{1}{2\pi}(\omega_L - \Omega_1)^{-2} \tag{3.12}$$

$$I_2(\omega_L) \sim (\tilde{\gamma}_o^{-1})_{3/21/2} g_1(\omega_L) + \left[2(\tilde{\gamma}_o^{-1})_{3/23/2} + \frac{1}{2}(\tilde{\gamma}_2^{-1})_{3/23/2}\right] g_2(\omega_L) - \frac{5}{4\pi}(\omega_L - \Omega_2)^{-2} \tag{3.13}$$

und aus Gl.(3.9) für die Anregungsfunktion der RS

$$I_{RS}(\omega_L) \sim \frac{1}{4\pi}\left[\left(\frac{1}{\omega_L-\Omega_1}+\frac{2}{\omega_L-\Omega_2}\right)^{-2}+\left(\frac{1}{\omega_L-\Omega_1}-\frac{1}{\omega_L-\Omega_2}\right)^{-2}\right] \tag{3.14}$$

Für die lineare Polarisation der D_2-CIF erhält man aus Gl.(3.10)

$$P_2^{\pi}(\omega_L) = \left[\frac{3}{2}\,(\tilde{\gamma}_2^{-1})_{3/23/2}\; g_2(\omega_L) - \frac{3}{4\pi}\,(\omega_L-\Omega_2)^{-2}\right]$$
$$\times\{\,2(\tilde{\gamma}_o^{-1})_{3/21/2}\; g_1(\omega_L) + \left[\,2(\tilde{\gamma}_o^{-1})_{3/23/2} +\right.$$
$$\left. + \frac{1}{2}(\tilde{\gamma}_2^{-1})_{3/23/2}\,\right] g_2(\omega_L) - \frac{5}{4\pi}(\omega_L-\Omega_2)^{-2}\}^{-1} \tag{3.15}$$

Lorentz-Bereich der D_2-Linie

Mit dem Ansatz $g_2(\omega_L)=\frac{\gamma_H}{2\pi}\,(\omega_L-\Omega_2)^{-2}$ erhält man aus Gln. (3.9),(3.10) unter der Voraussetzung $|\omega_L-\Omega_2| \ll \Omega_{FS}$ für das Intensitätsverhältnis von D_2-CIF zu RS

$$\frac{I_2}{I_{RS}} = \frac{1}{5}\,\gamma_H\left[4(\tilde{\gamma}_o^{-1})_{3/23/2} + (\tilde{\gamma}_2^{-1})_{3/23/2}\right]^{-1} \tag{3.16}$$

Gl.(3.16) zeigt,daß dieses Verhältnis nicht nur von der Anzahldichte sondern auch von der Polarisation der $^2P_{3/2}$ -Atome abhängt.

Nicht-Lorentz-Bereich

Zum Test der Faktorisierungs-Approximation im Nicht-Lorentz-Bereich wird die Polarisationsfunktion $P_2^{\pi}(\omega_L)$ der D_2-CIF zwischen den beiden D-Linien gemessen und mit der nach Gl.(3.15) berechneten verglichen.Der Vergleich setzt die Kenntnis der Absorptionsprofile $g_1(\omega_L)$,$g_2(\omega_L)$ voraus.Diese werden im Prinzip aus der Messung der beiden CIF-Funktionen $I_1(\omega_L)$ und $I_2(\omega_L)$ mit Hilfe von Gln.(3.12), (3.13) gewonnen. Praktisch wird dazu, anstelle von CIF-Absolutmessungen, die RS-Intensität $I_{RS}(\omega_L)$ als Referenz verwendet.Da die ω_L-Abhängigkeit von I_{RS} experimentell in Übereinstimmung mit Gl.(3.14) gefunden wurde /29/, konnte die I_{RS}-Messung auf ein einziges ω_L beschränkt werden; es wurde $|\nu_L-\nu_1|$ = 0.78 cm^{-1} im kurzwelligen D_1-Flügel gewählt, wo der apparative Streulichtpegel vernachlässigbar ist (vgl.3.5.).

Bei der Herleitung von Gl.(3.15) für den Polarisationsgrad der D_2-CIF wurde der Beitrag des Kernspins zur $^2P_{3/2}$-Polarisation vernachlässigt.Dies ist jedoch nicht ohneweiteres zulässig, obwohl die angenommene Resonanzabweichung $|\omega_L-\omega_2|>$ 10^{10} Hz groß ist gegen die HFS-Aufspaltung $\Omega_{HFS}(^2P_{3/2}) \approx$ 10^8 Hz:Da die Präzessionsperiode $\Omega_{HFS}^{-1}(^2P_{3/2}) \approx 10^{-8}$s des Kernspins groß ist gegen die Stoßdauer von 10^{-12}s ruht

der Kernspin während dieser Zeit; dies bedeutet, trotz Stöße bleibt eine Kernspinpolarisation übrig, selbst wenn die Elektronendrehimpulse dabei vollständig desorientieren. Zur Vermeidung dieser Komplikationen wurde daher im Experiment der Kernspin mittels eines Magnetfeldes abgekoppelt (3.5.3.).

3.5. Experimentelle Methoden

Die zur Untersuchung der Redistribution verwendete experimentelle Anordnung (Fig.7) bestand im wesentlichen aus einem frequenzverstimmbaren cw-Laser als Lichtquelle, einer Streuzelle zur Aufnahme des zu untersuchenden Na- Edelgas-Gemisches, einem FP-Interferometer zur spektralen Zerlegung des Streulichts sowie einer Strahlungs-Meßkette.

3.5.1. Apparative Grundausstattung

Laser

Pumplichtquelle für den Dye-Laser war bei sämtlichen Experimenten ein Ar^+-Laser CR 6.Zur Untersuchung der Rayleigh-Streuung (3.6.1.) diente der Dye-Laser CR 590.Einengung der Bandbreite erfolgte hier mit einer Kombination aus Interferenzfilter /G3/ und Fabry-Perot-Etalon /G4/; es wurde stabiler Laserbetrieb auf drei Moden erzielt mit einer effektiven Bandbreite von 2.2 GHz.Über Details von Intensitätsmessung, Modenkontrolle und kontrollierter Frequenzverstimmung wurde bereits in Ref. /25/,/33/ berichtet. Die Untersuchung der stoßinduzierten Fluoreszenz (3.6.2.) erfolgte mittels der Einmoden-Version CR 599.Innerhalb der Dopplerbreite (2 GHz) der Na-D-Linien wurde dabei die kontinuierliche Frequenzverstimmbarkeit über 30 GHz ausgenutzt.In den stoßbestimmten Linienflügel (Resonanzabweichungen > 20 GHz) wurde die Laserfrequenz in diskreten Schritten

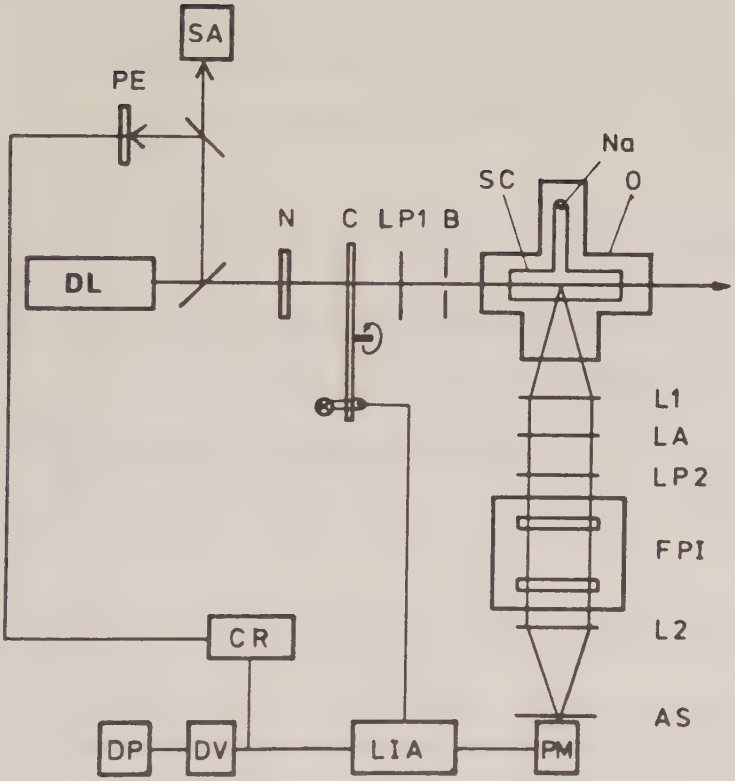

Fig. 7. Apparatur zur Untersuchung nahresonanter Laserstreuung am Natrium.

DL Dye-Laser; SA Spektrum-Analysator; PE Fotozelle; N Neutralgraufilter; C Chopper; LP1,2 Linear-Polarisator; B Lochblende; SC Streuzelle; Na Natriumvorrat; O Ofen; L1,2 abbildende Linse; LA Linear-Analysator; FPI Fabry-Perot Interferometer; AS Meßblende; PM Fotomultiplier; LIA Lock-in Verstärker; CR Schreiber; DV Analog-Digital Wandler; DP Lochstreifenstanzer.

in Einheiten des freien Spektralbereichs FSR des dicken Intracavity-Etalons (9.9 GHz) verstimmt; die Messung von FSR erfolgte durch Abzählen der Moden zwischen den beiden D-Linien.

Streuzelle

Zur Aufnahme des Natrium-Argon-Gemisches diente eine quaderförmige Küvette aus Quarzglas, 10*10*30 mm.Techniken der Präparation, Heizung und Temperaturkontrolle wurden bereits in /32/ ausführlich dargestellt.Zur Reduktion von apparativem Streulicht wurde ein Blendensystem geeigneter Geometrie entwickelt /33/ und eingesetzt.

Die verwendeten Anzahldichten betrugen 10^{10}-10^{11} cm^{-3} für Na und $1*10^{17}$ cm^{-3} für Ar.Der obere Grenzwert für Na bestimmte sich als Kompromiß zwischen möglichst großem Fluoreszenzsignal einerseits und optisch dünner Schicht andererseits.Der Ar-Wert ergab sich aus der Beobachtungsbedingung für Einzelstöße (d.h., Anzahl der Stöße während der spontanen Lebensdauer <1).

Zur Kontrolle optisch dünner Verhältnisse wurde bei einem Teil der Messungen (3.6.2.2.) die Na-Teichenzahldichte außer über die Temperatur im Seitenarm der Küvette (Fig.7) noch aus Messung der Transmission der Na-Schicht im Zentrum der D_2-Linie bestimmt.Dazu wurde der in seiner Intensität stark abgeschwächte Laser (< 5 $\mu W/mm^2$) über die D_2-Resonanz

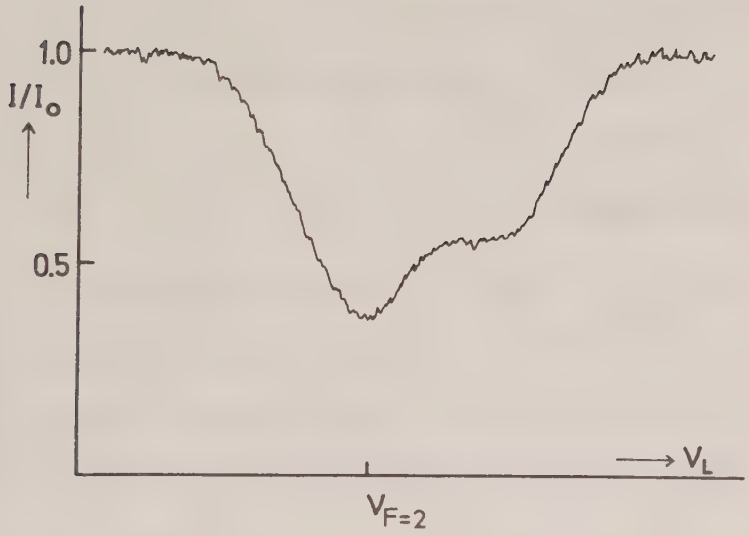

Fig. 8. Transmissionsprofil in der Nähe des Na-Übergangs $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 3^2P_{3/2}$ zur Bestimmung der Na-Dichte in der Streuzelle.
I_L = 5μW/mm^2 (single mode); Ar-Anzahldichte: 9.9*10^{16}cm^{-3}

verstimmt (Fig.8) und der Absorptionskoeffizient im Minimum des Transmissionsprofils an der Stelle des HFS-Übergangs $^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow {}^2P_{3/2}$ gemessen.Die daraus mittels einer bekannten Beziehung /32/ ausgewertete Teilchenzahldichte stimmte bei einer über einen längeren Zeitraum eingesetzten Küvette bis auf wenige % mit dem Wert aus der Temperaturmessung überein.

FP-Interferometer

Zur Trennung der 3 spektralen Streulichtkomponenten, nämlich der RS-Linie bei der Anregungswellenlänge und den beiden Na-D-CIF-Linien, diente ein FPI.Wegen seiner großen Transmission ist dieses dispersive Element für die Registrierung der extrem geringen Signalamplituden bei Anregung in den weiten Linienflügeln besonders geeignet.

Für Anregung der Lichtstreuung im nahresonanten Bereich, bei Resonanzabweichungen $\Delta\nu_L \lesssim 100$ GHz = $\Delta\lambda_L \lesssim 1$Å, wurde ein druckgesteuertes FPI /G18/ mit festem Distanzring (d=1.1mm), entsprechend einem freien Spektralbereich FSR von 1.57 Å verwendet.Durch Druckvariation von Frigen als Arbeitsgas konnte die gewünschte Transmissionswellenlänge für eine der Streulichtkomponenten fest eingestellt werden; der zeitlineare Anstieg des Drucks mit Hilfe einer Lavaldüse ermöglichte außerdem die kontinuierliche Abtastung des gesamten Streulichtspektrum.Das Instrument zeichnet sich durch große Stabilität der Justierung aus, hat aber den

Nachteil eines kleinen FSR.
Für Anregung in den weiten Linienflügeln ($\Delta\lambda_L > 1$ Å) wurde daher ein piezo-gesteuertes FPI /G20/ eingesetzt, bei dem Plattenabstände d bis herab zu 0.1 mm, entsprechend FSR < 15 Å, relativ bequem realisierbar sind.Im Experiment wurde ein Abstand von d=0.49 mm gewählt, bei dem die D-Linien spektral gut getrennt waren.Der FSR beträgt dabei 3.58 Å.Bei diesem Gerät variiert jedoch d infolge Temperatur-Drifts während der Meßzeit, sodaß eine elektronische Stabilisierung notwendig war.Dazu wurde ein in /35/ beschriebenes Verfahren verwendet, bei dem die Transmission eines He-Ne-Lasers in den Flanken des FPI-Apparateprofils zur Regelung ausgenutzt wird.Mit diesem Verfahren konnte Konstanz von d über eine Meßzeit von 2 Stunden erzielt werden.

Zur Intensitätsmessung der RS- und CIF-Linien wurde die Apparatebreite des FPI an die Linienbreiten angepaßt.Bei Linienbreiten von ≈5 GHz (Dopplerbreite + Hyperfeinaufspaltung bei den Fluoreszenzlinien) mußten dazu Apertur-Blendendurchmesser von typisch 1 mm gewählt werden.Die Apparatebreite wurde experimentell mit Hilfe eines He-Ne-Lasers bestimmt.

Streulicht-Meßkette

Die Messung der Signalintensitäten erfolgte mittels Trockeneis gekühltem Multiplier /G23/ und Lock-in-Technik.Die Signale am Ausgang des Lock-in-Verstärkers /G22/ wurden parallel auf einen Schreiber /G9/ und über einen AD-Wandler (Digitalvoltmeter /G24/) auf Lochstreifen (Stanzer /G25/) ausgegeben.Über niederfrequente Signalschwankungen (u.a. bedingt durch die Elektronik des Lock-in-Verstärkers, abhängig vom Verstärkungsbereich) wurde vom Rechner gemittelt.Die Mittelung erfolgte, je nach Amplitude und Periode der Schwankungen, über 10 - 100 Einzelmessungen, bei einer Repetitionsrate der Einzelmessung von 1 s^{-1}.

3.5.2. Messung des Polarisationsgrades

Zur Untersuchung des Polarisationsgrades der umverteilten Strahlung wurde das Na/Ar-Gemisch in der Küvette mit linear polarisiertem Licht angeregt und der lineare Polarisationsgrad des Streulichts bei Beobachtung unter 90° gegen Anregungsrichtung und anregenden Feldvektor gemessen (Fig.7).Als Linearpolarisator LP für die Anregung diente ein Glan-Thomson Prisma /G27/, als Linearanalysator LA für das Streulicht, wegen der größeren Apertur, eine glasgefaßte Polarisationsfolie /G28/.
Zur Vermeidung apparativer Einflüsse auf die Messung (Polarisation durch das FPI, polarisationsabhängige Multiplierempfindlichkeit) wurde ein Hilfspolarisator LP2 zwischen

LA und FPI eingebaut, mit fester Durchlaßrichtung unter 45° gegen die des LA; die 45°-Stellung wurde mit Hilfe der unpolarisierten D_1-Fluoreszenz vor jeder Messung kontrolliert.
Die sehr unterschiedlichen Polarisationsgrade von D_2-CIF (0.1 - 0.2) und RS-Linie (0.6 nahe der D_2-Resonanz) erforderten eine besonders sorgfältige spektrale Trennung der beiden Komponenten.Um eine gegenseitige Störung durch die Apparateflügel zu vermeiden, wurde daher bei den Messungen ein Minimalabstand von $\approx$0.2 Å bei einer Apparatebreite von $\approx$0.05 Å nicht unterschritten.

Um Effekte durch Reabsorption in optisch dicker Schicht auszuschließen, wurde in einem Vorversuch der Polarisationsgrad P_2^{π} der D_2-Fluoreszenz als Funktion der Zellentemperatur gemessen.Es ergab sich (Fig.9), daß P_2^{π} bis etwa 135 $^{\circ}$C konstant bleibt und danach abfällt.Die Messungen wurden daraufhin bei 135 $^{\circ}$C durchgeführt.

3.5.3. Äußeres Magnetfeld

Die quantitative Interpretation der Polarisationsgrad-Messungen erfordert eine Abkopplung des Kernspins im $^2P_{3/2}$-Zustand (3.4.2.).Dies wird üblicherwise mittels eines Magnetfeldes im Paschen-Back-Gebiet der HFS von $^2P_{3/2}$ realisiert; dabei ist die Feldrichtung zur Vermeidung von

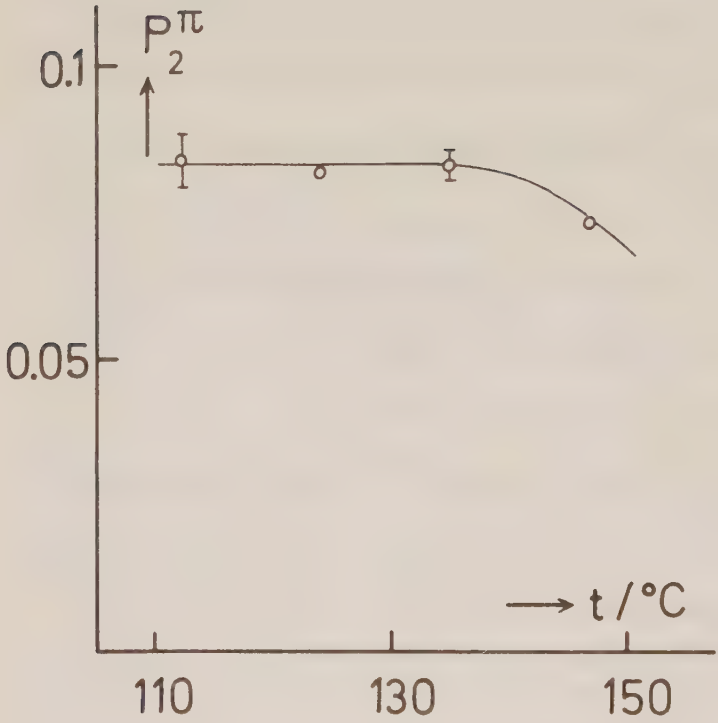

Fig. 9. Linearer Polarisationsgrad der Na D_2-Fluoreszenz als Funktion der Zellentemperatur.
π-Anregung im roten Flügel der D_2-Linie: $\Delta\tilde{\nu}_L = 1.26\ cm^{-1}$; $I_L = 10\ mW/mm^2$; $n_{Ar} = 1.0 * 10^{17}\ cm^{-3}$

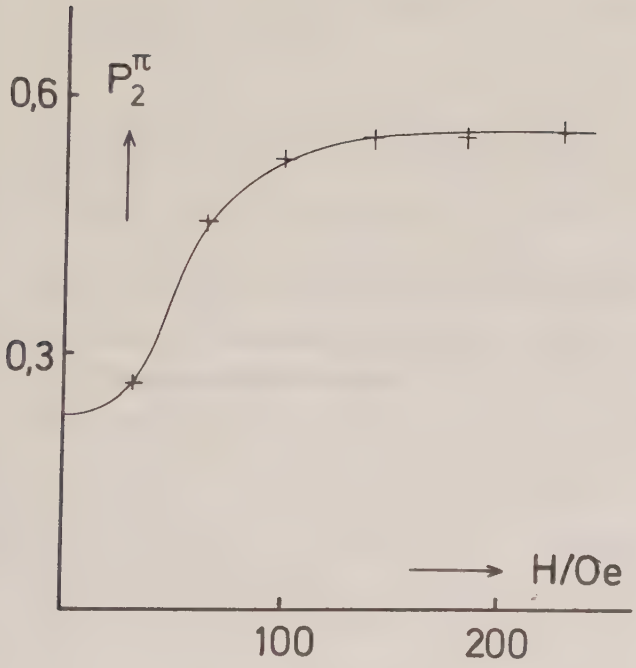

Fig. 10. Linearer Polarisationsgrad der Na D_2-Fluoreszenz bei Anregung auf dem Übergang $3^2S_{1/2}(F=2) \rightarrow 3^2P_{3/2}$ als Funktion der Magnetfeldstärke ($\underline{H} \parallel \underline{\varepsilon}_L$).
Anregung: π-Licht; Beobachtung: $\perp \underline{\varepsilon}_L$
I_L = 10 µW/mm^2; $n_{Na} = 2.8 * 10^{10}$ cm^{-3}

Zeeman-Kohärenzen parallel zum elektrischen Vektor des Laserfeldes zu wählen.Zur Felderzeugung diente ein Helmholtz-Spulenpaar; die Feldmessung erfolgte mittels einer Hall-Sonde.

Der gemessene Polarisationsgrad der D_2-Fluoreszenz (Fig.10) steigt vom Wert 0.23 im Nullfeld auf einen Sättigungswert von 0.55 bei ≈ 140 Oe an.Dieser Sättigungswert stimmt gut mit dem theoretischen 0.6 im kernspinfreien Fall überein. Der sehr viel geringere Polarisationsgrad im Nullfeld erkärt sich qualitativ durch die Präzessionsbewegung des Elektronendrehimpulses bei Anwesenheit der Hyperfeinwechselwirkung (vgl.3.2.1.).

3.6. Experimentelle Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie

3.6.1. Rayleigh-Streuung

Das Streuexperiment wurde an reinem Na-Dampf mit Anzahldichten um $1*10^{10}$ cm^{-3} durchgeführt,wo Stöße vernachlässigbar sind.

Fig.11 zeigt die polarisationsabhängigen RS-Anregungsfunktionen im Übergangsbereich von ($^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$)-resonanter zu nichtresonanter Anregung.Als Nullpunkt der Frequenzskala wurde die Stelle maximaler Streuintensität gewählt, die mit dem Maximum des Absorptionsprofils Fig.13 zusammmenfällt.Bei $\Delta\tilde{\nu}_L \approx 0.2$ cm^{-1} wird ein scharfes Abknicken der Profile beobachtet, das den Übergang der exponentiell abfallenden Doppler-Funktion in die nur mit $\Delta\tilde{\nu}_L^{-2}$ abfallende Lorentz-Funktion kennzeichnet.

Fig.12 zeigt die aus den Messungen Fig.11 ausgewerteten Polarisationsfunktionen $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$.Im Bereich des Dopplerkerns ist starke Depolarisation zu beobachten, die durch den Einfluß der HF-Wechselwirkung auf den Streuprozeß im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L \lesssim \Delta\tilde{\nu}_{HFS} \approx \Delta\tilde{\nu}_D$ bedingt ist (vgl. 3.2.1.).Das zweistufige Minimum von $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ reflektiert den etwas unterschiedlichen Polarisationsgrad bei selektiver Anregung auf den beiden HF-Übergängen $^2S_{1/2}(F=1,2) \rightarrow {}^2P_{3/2}$.

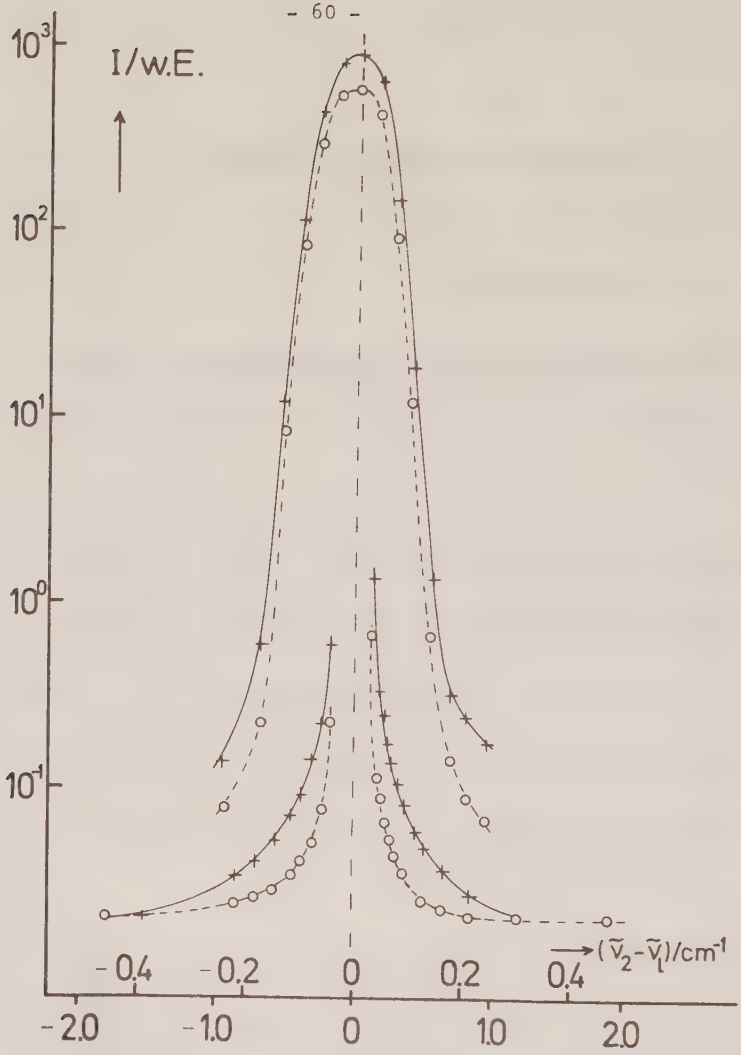

Fig. 11. Polarisationsabhängige Intensität der Rayleigh-Streuung im Bereich der Na D_2-Resonanz.

Anregung: π-Licht; Beobachtung: $\perp \varepsilon_L$
$I_L = 10^{-2}$ mW/mm^2 (Bandbreite: 2.2 GHz (3 Moden))
$n_{Na} = 6.7*10^9$ cm^{-3}

-+-+- (-o-o-) Emission $\parallel$ ($\perp$) ε_L

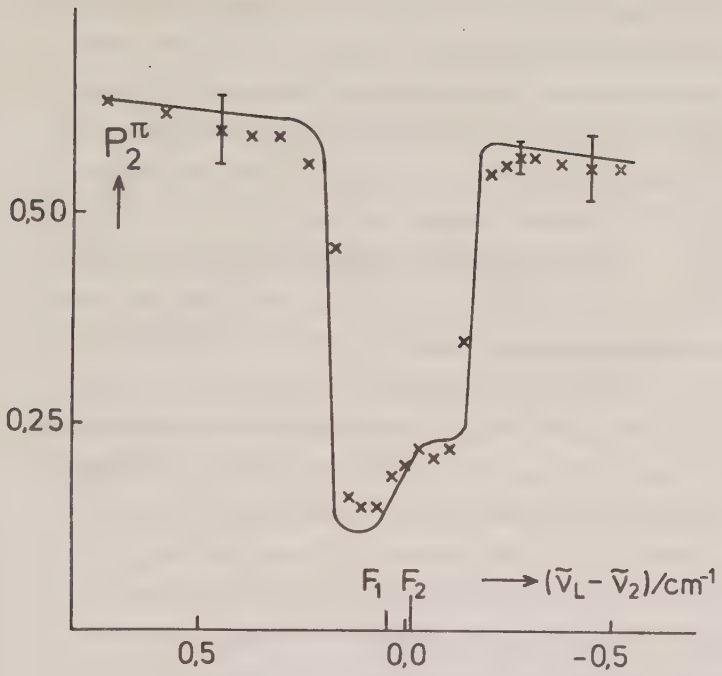

Fig. 12. Linearer Polarisationsgrad der RS bei Anregung im Bereich des Na D_2-Resonanzübergangs. Nullpunkt der Frequenzskala an der Stelle maximaler Streuintensität.

Experiment: $I_L = 10^{-2}$ mW/mm^{-2}; Bandbreite = 2.2 GHz (3 Moden); $n_{Na} = 6.7 * 10^{10}$ cm^{-3}.

Theorie: Rechnung nach Gln.(3.8),(3.9).

Die Position der Minima ist von den beiden Übergängen weg in die Flügel der zugehörigen Dopplerprofile verschoben, wo der Einfluß der jeweils anderen Komponente gering ist. Außerhalb des Dopplerkerns steigt P_2^{π} auf den Wert 0.6 an, der bei abgekoppeltem Kernspin erwartet wird (vgl. 3.2.1.).Die erneute langsame Abnahme von $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ in Richtung auf die D_1-Linie ist durch den in 3.2.1. diskutierten Beitrag des $^2P_{1/2}$-Niveaus zum Streuprozess bedingt (destruktive Interferenz der Streuamplituden der Zwischenzustände $^2P_{1/2}$- und $^2P_{3/2}$).Der abrupte Anstieg von P_2^{π} bei $\Delta\tilde{\nu}_L \approx 0.2\ cm^{-1}$ ist durch den scharfen Übergang der Dopplerflügel in den Lorentzflügel der Anregungsfunktionen Fig.11 verursacht, der etwa an der gleichen Stelle stattfindet.

Insgesamt ist die Übereinstimmung zwischen gemessener und nach Gln.(3.8), (3.9) berechneter Polarisationsfunktion sehr gut und ist als bemerkenswerte Bestätigung des Experiments durch die Theorie zu werten.

3.6.2. Stoßinduzierte Fluoreszenz

Die Experimente wurden an einem Gemisch von $1*10^{10}\ cm^{-3}$ Na mit $1*10^{17}\ cm^{-3}$ Ar durchgeführt mit dem Ziel der Untersuchung von Streuprozessen bei Anregung in den weiten Flügeln (3.6.2.3.).Mit den dazu aus Gründen des Signallevels benötigten Anregungsintensitäten von typisch 1-10 mW/mm^2 finden bei Anregung im Dopplerkern Umbesetzungen der $^2S_{1/2}$-Subniveaus statt, die ihrerseits die polarisationsabhängigen

CIF-Anregungsfunktionen beeinflussen.Diese Pumpeffekte werden zunächst in 3.6.2.1. näher diskutiert.Bei den Experimenten wird die jeweils über die Dopplerbreite und HF-Aufspaltung integrierte Gesamtintensität der D_1- bzw. D_2-Strahlung als Funktion der Anregunsfrequenz gemessen.

3.6.2.1. Anregung innerhalb des Dopplerkerns

Fig.13 zeigt die bei $I_L \approx 3$ mW/mm^2 gemessene D_2-Anregungsfunktion im Vergleich zu berechneten Profilen, die mit und ohne Berücksichtigung von $^2S_{1/2}$-Subniveau-Pumpen erhalten wurden /26/.Besonders auffällig ist die durch das Pumpen der F=1,2 Niveaus verursachte Verschmälerung des Profilkerns.Die Höcker der beiden dopplerverschmierten HFS-Komponenten sind stark herabgedrückt; dies demonstriert die Entleerung der F=1,2 Niveaus bei Absorption in der Nähe der Übergänge F_1,F_2.Bei Annahme stationärer Pumpverhältnisse stimmt die berechnete Halbwertsbreite $3.66*10^{-2}$ cm^{-1} gut mit dem gemessenen Wert $(4.15 \pm 0.14)*10^{-2}$ cm^{-1} überein.In den Flügeln liegt jedoch die gemessene Absorption deutlich über der berechneten.Dies zeigt, daß hier die Besetzung der Subniveaus größer ist als angenommen. Als mögliche Ursachen hierfür kommen infrage:1) Abweichung von der Stationarität des Pumpprozesses infolge der geringeren Absorptionsrate; 2) Diffusion thermisch besetzter Atome von außen in das laserangeregte Volumen.Über ähnliche Messungen wurde kürzlich in Ref./36/ berichtet.Bei Berücksichtigung der Diffusion wurde gute Übereinstimmung mit Rechnungen gefunden.

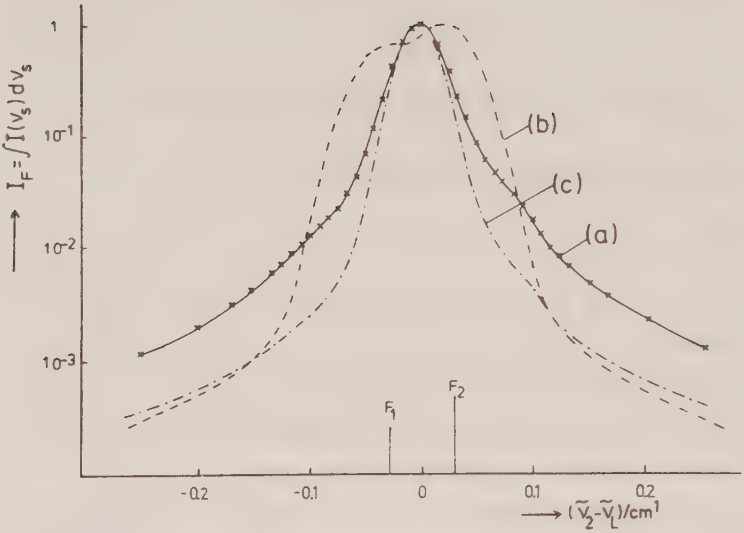

Fig. 13. Intensität der D_2-Fluoreszenz bei Anregung im Dopplerbereich der Na D_2 -Linie.

Experiment: -x-x- Anregung: π Licht; Beobachtung: $\perp \varepsilon_L$

I_L = 3 mW/mm^2; $n_{Na} = 4.0 * 10^{10}$ cm^{-3}; $n_{Ar} = 1.0 * 10^{17}$ cm^{-3}

Theorie: Voigtprofile: $\Delta\tilde{\nu}_D$=1.6 GHz; $\Delta\tilde{\nu}_L$=0.08 GHz

.... optisches Pumpen /26/
---- thermische Besetzung
} der $^2S_{1/2}$(F=1,2)-Subniveaus.

Die Polarisationsfunktion $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$, Fig.14 Kurve a, ist gekennzeichnet durch ein strukturiertes Minimum in der Nähe der beiden HF-Übergänge F_1,F_2, gefolgt von zwei ausgeprägten äußeren Maxima.Die inneren Minima reflektieren wie bei der stoßfreien RS (Fig. 12) den unterschiedlichen Polarisationsgrad der beiden HFS-Komponenten.Aufgrund des Stoßdisalignments liegen jedoch die Absolutwerte tiefer als im stoßfreien Fall.Andererseits liegen die gemessenen Absolutwerte erheblich über den auf der Grundlage der FA Gln. (3.8)-(3.10) berechneten (Fig. 14, Kurve c).Allerdings wird in diesen Rechnungen das durch Zeemanpumpen erzeugte Alignment der $^2S_{1/2}$-Atome vernachlässigt.Berücksichtigung dieses Alignments durch eine vereinfachte Abschätzung /26/ (Ratengleichungsnäherung, Vernachlässigung der $^2P_{3/2}$-Stoßrelaxation, stationäre Pumpverhältnisse) ergibt eine Erhöhung des D_2-Polarisationsgrades (Fig.14, Kurve b), und die Übereinstimmung mit dem Experiment ist viel besser. Die theoretische ω_L-Unabhängigkeit des Polarisationsgrades (Fig.14, Kurve b) folgt aus der Annahme stationärer Pumpbedingungen.Die im Experiment tatsächlich beobachtete Variation mit ω_L zeigt jedoch, daß diese Annahme nur näherungsweise gültig ist.Insbesondere demonstriert die Existenz des kleinen zentralen Maximums zwischen den Minima, dessen Position mit dem F_2-Übergang koinzidiert, die bei Anregung auf diesem Übergang zu erwartende maximale Pumpeffizienz.

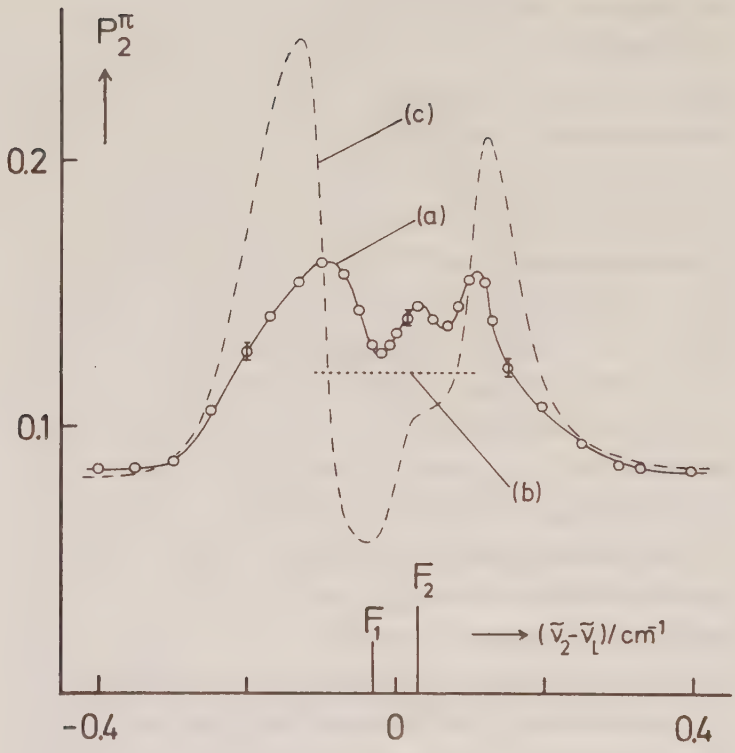

Fig. 14. Polarisationsfunktionen der NaD_2-CIF bei π-Anregung im Bereich des Na3($^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$) Übergangs.

Experiment: -o-o- I_L = 3 mW/mm^2; FPI-Apparatebreite.:0.13cm^{-1}
$n_{Na}=4.0*10^{10}$ cm^{-3}; $n_{Ar}=1.0*10^{17}$ cm^{-3};

Theorie: $\Delta\tilde{\nu}_D$=1.6 GHz; $\Delta\tilde{\nu}_H$=0.08 GHz; $\sigma_D=(106\pm12)$ A^2
---- thermische Besetzung von $^2S_{1/2}$; Resultat aus Gln.(3.8), (3.10),(3.11) unter Berücksichtigung der experimentellen FPI-Transmissionsfunktion
.... optisches Pumpen im $^2S_{1/2}$-Grundzustand /26/.

Die beiden äußeren Maxima von $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ liegen im Übergangsbereich von resonanter zu nichtresonanter Anregung und demonstrieren den hier stattfindenden scharfen Anstieg der Polarisation der Rayleigh-Komponente (Fig.12): Da die Stelle des Überganges $\Delta\tilde{\nu}_G \approx \Delta\tilde{\nu}_L \approx 0.2\ cm^{-1}$ vergleichbar ist mit der Breite $0.13\ cm^{-1}$ des auf die D_2-Linie positionierten FPI-Transmissionsmaximums, gelangt ein Teil der hochpolarisierten RS über die Flanken des Transmissionsprofils auf den Detektor; mit wachsendem $\Delta\tilde{\nu}_L$ separieren die RS und D_2-CIF allmählich vollständig, und P_2^{π} sinkt auf den niedrigen D_2-CIF-Wert.Die etwas unterschiedliche Höhe der Maxima korreliert mit derjenigen der nichtresonanten RS-Polarisation zu beiden Seiten der D_2-Resonanz.Position und unterschiedliche Höhe werden qualitativ durch die numerische Rechnung reproduziert.Die im Experiment zu nierdrigen Absolutwerte zeigen einen zu großen Beitrag der niedrig polarisierten D_2-CIF an.In den Gln. (3.8)-(3.10) der Theorie wurde für das die D_2-CIF bestimmende Absorptionsprofil $g_2(\omega_L)$ die in Fig.13b dargestellte Funktion angesetzt. Tatsächlich liegen jedoch die gemessenen Flügel bei $\Delta\tilde{\nu}_L \approx 0.2\ cm^{-1}$ über den theoretischen.Unter Verwendung des experimentellen Profils $g_2(\omega_L)$ in der Rechnung ist daher eine bessere Übereinstimmung in diesem Bereich zu erwarten.

3.6.2.2. Anregung in den stoßbestimmten Linienflügeln

Lorentzbereich der D_2-Linie

In diesem Bereich erscheinen D_2-CIF und RS auch bei Doppler-begrenzter Auflösung im Streuspektrum getrennt (Fig.15). Bei einer Ar-Teilchendichte $9.9*10^{16}$ cm^{-3} wurde ein Intensitätsverhältnis $I_2/I_{RS} = 2.3 \pm 0.1$ gemessen.Dieser Wert stimmt gut mit dem aus Gl.(3.16) und Anhang A3 berechneten Wert 2.1 überein.

Im Bereich $0.2 = |\Delta\tilde{\nu}_L|/cm^{-1} = 2$ beider D -Flügel ist der Abfall der D_2-CIF-Anregungsfunktion nahezu Lorentz-förmig (Fig.16).Hier ist der gemessene Polarisationsgrad P_2^{π} der D_2-CIF unabhängig von $|\Delta\tilde{\nu}_L|$ in Übereinstimmung mit der Voraussage der FA gemäß Gl.(3.10).

Nicht-Lorentzbereich

Fig.17 zeigt die Anregungsfunktionen $I_1(\omega_L)$,$I_2(\omega_L)$ für D_1-CIF und D_2-CIF im Bereich zwischen den D-Linien.Der Abfall in der Nähe der zugehörigen Resonanzen verläuft proportional den Absorptionsprofilen $g_1(\omega_L)$,$g_2(\omega_L)$.Der Wiederanstieg bei Annäherung an die jeweils andere Resonanz wird bestimmt durch die ansteigende Absorption dort und nachfolgende Stoßüberführung $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$, also $I_1(\omega_L) \sim \gamma_{3/21/2}\, g_2(\omega_L)$ und $I_2(\omega_L) \sim \gamma_{1/23/2}\, g_1(\omega_L)$.Die aus

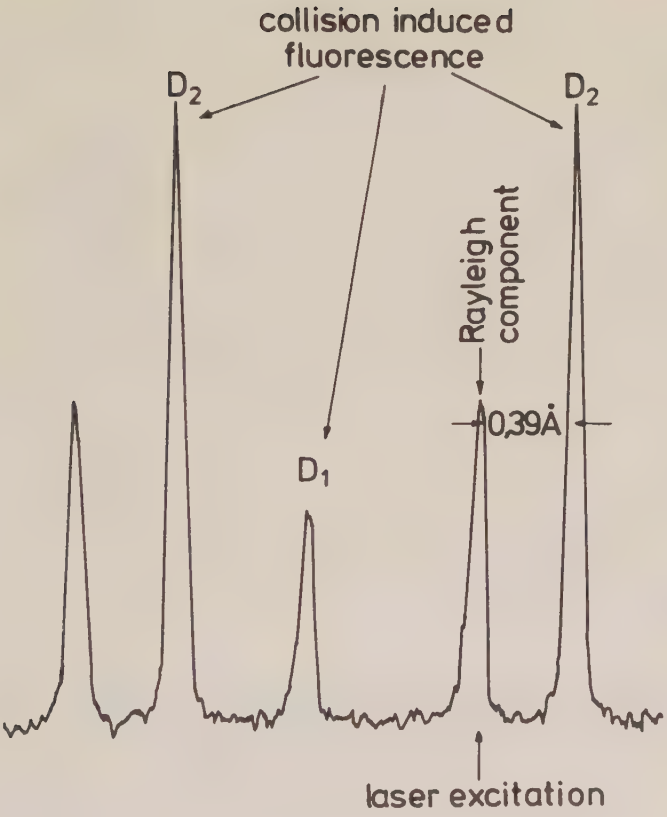

Fig. 15. Streuspektrum bei π-Anregung an einem Na/Ar Gemisch im Abstand $\Delta\lambda_L$=0.39 Å von der D_2-Resonanz.

$n_{Na}=4.0*10^{10}$ cm^{-3}; $n_{Ar}=1.0*10^{17}$ cm^{-3};
I_L=20 mW/mm^2, Bandbreite : 2.2 GHz (3 Moden);
FPI-Apparatebreite: 0.13 cm^{-1}.

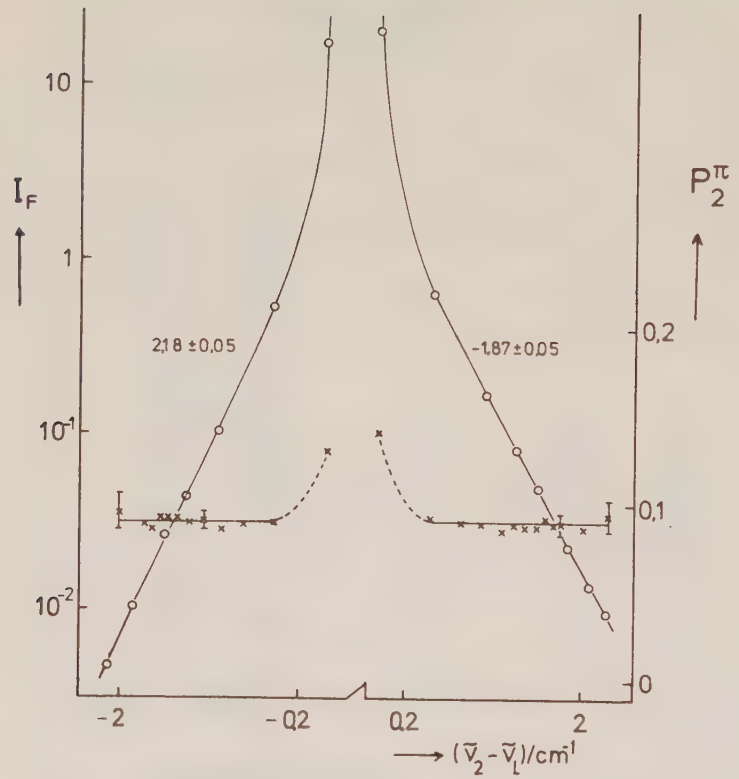

Fig. 16. Intensität und Polarisationsgrad der Na D_2-Fluoreszenz bei Anregung in den Lorentzflügeln der D_2-Resonanz.

Anregung: π-Licht; Beobachtung: $\perp \varepsilon_L$
I_L=20 mW/mm^2; Bandbreite:2.2 GHz
$n_{Na}=4.0*10^{10}$ cm-3; $n_{Ar}=1.0*10^{17}$ cm-3.

o-o-o Intensität

x-x-x Polarisationsgrad

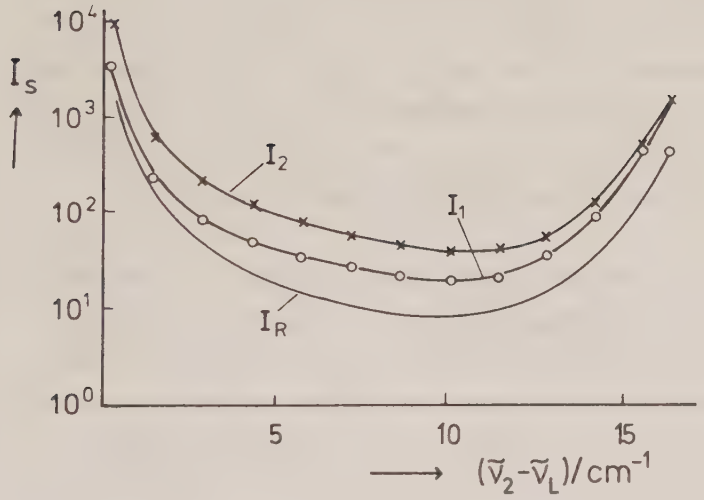

Fig. 17. Anregungsfunktionen für Fluoreszenz- und Rayleighkomponenten im Bereich zwischen den Na D-Linien.

Anregung: π-Licht; Beobachtung: $\perp \underline{\varepsilon}_L$; $I_L \approx 20$ mW/mm^2 (single mode); $n_{Na}=2.8*10^{10}$ cm^{-3}; $n_{Ar}=1.0*10^{17}$ cm^{-3}; Magnetfeld: H=180 Oe ($\underline{H} \parallel \underline{\varepsilon}_L$).

Streuintensitäten sind Mittelwerte über beide Analysatorrichtungen. Die Rayleighfunktion wurde durch Anschluß des theoretischen Verlaufs (3.14) an den Meßpunkt bei $(\tilde{\nu}_1-\tilde{\nu}_L) = -0.72$ cm^{-1} gewonnen.

den CIF-Anregungsfunktionen mittels GLn.(3.12)-(3.14) ausgewerteten Absorptionsfunktionen sind in Fig.18 dargestellt. Der Abfall von $g_1(\Delta\omega_L) \sim \Delta\omega_L^{-\alpha}$ im Bereich $10^1 \leq \Delta\omega_L/\Delta\omega_D \leq 10^2$ des blauen D_1-Flügels ist mit α=2.18 nahezu Lorentz-förmig. Demgegenüber ist der Abfall von $g_2(\Delta\omega_L)$ im roten D_2-Flügel mit α=1.7 erheblich langsamer.Solche stoßbestimmten Absorptionsverläufe sind typisch für die meisten Resonanzlinien mit Neutralteilchen-Wechselwirkung.

Die mit den Absorptionsprofilen nach Gl.(3.15) berechnete Polarisationsfunktion $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ in Fig.19 zeigt mit wachsender D_2-Resonanzabweichung $\Delta\tilde{\nu}_L := \tilde{\nu}_2 - \tilde{\nu}_L$ zunächst einen Anstieg und anschließend in Richtung auf die D_1-Linie einen Abfall auf Null.Aufgrund der FA ist der Anstieg bedingt durch die schwächer als Lorentz-förmige Abnahme von $g_2(\Delta\tilde{\nu}_L)$ der Abfall bei Annäherung an die D_1-Linie ist verursacht durch zunehmende Erzeugung unpolarisierter $^2P_{1/2}$-Atome (über D_1-Anregung), die anschließend nach $^2P_{3/2}$ überführt werden und dadurch die Polarisation im $^2P_{3/2}$-Zustand vermindern.

Ganz anders als der berechnete zeigt der gemessene Polarisationsverlauf einen monotonen Abfall, der überlagert ist von einem Dip bei 3.5 cm^{-1}.Sowohl der Dip als auch der im Vergleich zur Voraussage der FA erheblich geringere Polarisationsgrad oberhalb $\Delta\tilde{\nu}_L \approx 5$ cm^{-1} deuten auf eine zusätzliche $^2P_{3/2}$-Depolarisation während des Endstadiums des starken Stoßes, der die Photonenabsorption im Linien-

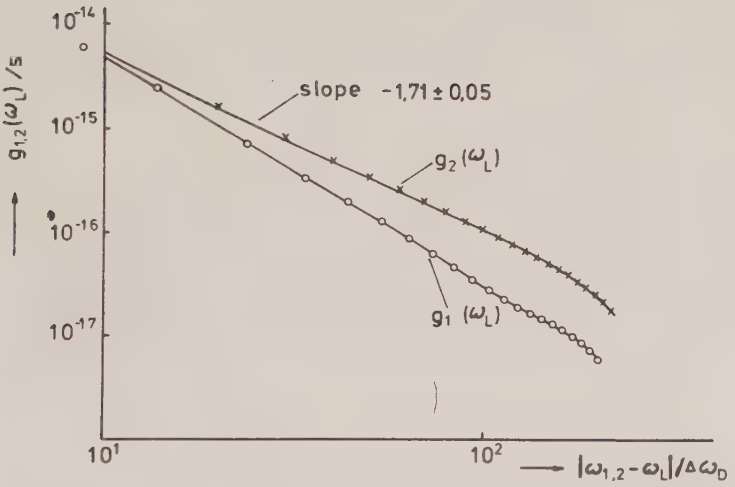

Fig. 18. Absorptionsprofile im roten Na D_2- bzw. im blauen Na D_1-Flügel aus Fluoreszenzanregungsfunktionen Fig. 17 und Gln. (3.12)-(3.14).

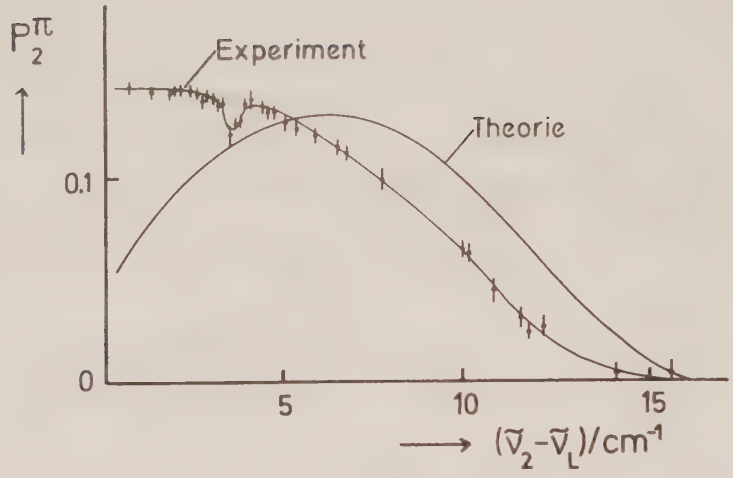

Fig. 19. Zum Test der Faktorisierungsapproximation der Redistributionstheorie: Linearer Polarisationsgrad der Na D_2-Fluoreszenz bei Anregung zwischen den D-Linien.

-+-+- Experiment: Versuchsparameter wie in Fig. 17
FSR des FPI im Bereich 2.5-5 cm^{-1}: 10.3 cm^{-1}

——— Rechnung nach (3.15) mit experimentellen Absorptionsprofilen aus Fig. 18.

flügel induziert.Solche Korrelationen zwischen Absorption und Emission von Photonen und Stößen werden in der FA vernachlässigt.Es ist jedoch zu erwarten, daß sie im hier untersuchten Nicht-Lorentz-Breich der Absorption, in dem die Stoßapproximation nicht mehr gültig ist, eine erhebliche Rolle spielen.

Für die Depolarisationsmechanismen, nämlich Dephasierung zwischen den Π,Σ -Zuständen des Na3P/Ar-Systems und Rotation des $^2P_{3/2}$-Elektronendrehimpulses, lassen sich Wirkungsradien und zugehörige kritische Absorptionsfrequenzen abschätzen (vgl.4.3.2.).Mit den Potentialdaten /37/ für das System Na/Ar erhält man $\tilde{\nu}_d-\tilde{\nu}_2 \approx -5\ cm^{-1}$ für Dephasierung und $\tilde{\nu}_r-\tilde{\nu}_2 \approx -13\ cm^{-1}$ für Rotation.Diese Werte liegen innerhalb des Spektralbereichs der gemessenen zusätzlichen Depolarisation.

Die gemessene Position des Dips in $P_2^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ bei $3.5\ cm^{-1}$ liegt nahe dem Kreuzungspunkt $\Delta\tilde{\nu}_c$ der Potentiale $A^2\Pi_{3/2}$ und $B^2\Sigma_{1/2}$ von $Na^2P_{3/2}/Ar$; mit den Potentialdaten in Ref. /37/ ergibt sich $\Delta\tilde{\nu}_c = 6.0\ cm^{-1}$ und mit den Daten in Ref. /38/ $\Delta\tilde{\nu}_c = 2.3\ cm^{-1}$.Dies legt es nahe, die Existenz des Dips mit der Potentialkreuzung in Beziehung zu setzen.Bei Anregung an dieser Stelle würde man in der Tat eine starke Mischung der Molekülzustände und damit der zugehörigen atomaren J=3/2-Subniveaus $M_J = \pm 1/2, \pm 3/2$ erwarten, die zu einer zusätzlichen Depolarisation der emittierten Fluoreszenz führt.Die experimentell beobachtete relativ geringe

Dip-Tiefe kann durch Folgestöße während der spontanen Lebensdauer (≈1) bedingt sein.Bei Zutreffen dieser Interpretation eröffnet sich die Möglichkeit einer direkten experimentellen Bestimmung von Potential-Kreuzungsstellen.

4. Halbstöße von Na 3^2P-Atomen mit Edelgasen

4.1. Stoßprozesse und interatomare Potentiale

Stößt ein angeregtes Atom A^* mit einem Grundzustandsatom B, so kann eine Vielzahl von Prozessen ablaufen.Betrachten wir das Stoßpaar $A^*(m)+B$, wo m entartete oder nichtentartete Subniveaus von A^* bezeichnen.Die meisten der möglichen Resultate, außer denjenigen mit Ionisation oder Ladungsaustausch, lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

(1) $A^*(m)+B$ elastische Streuung

(2) $A^*(m')+B$ Depolarisation

(3) $A^{**}(m')+B$ intra-atomare Anregungsübertragung

(4) $A + B^* + \Delta E$ interatomare Anregungsübertragung

(5) $A + B + \Delta E$ Löschung

wobei A^{**} ein weiterer, mit A^* nichtentarteter angeregter Zustand von A bezeichnet, sowie ΔE die Translationsenergie der Stoßpartner.

Die Vielzahl der Stoßdaten, die für ein vorgegebenes System erhalten werden können, sind einheitlich darstellbar mittels des Konzepts adiabatischer,interatomarer Potentiale.Mit

solchen Potentialen lassen sich im Prinzip alle Querschnitte, Raten und Linienprofile auf der Grundlage einer geeigneten Stoßtheorie berechnen.Umgekehrt können aus den Streudaten interatomare Potentiale experimentell bestimmt werden.

Unter diesem Aspekt erscheinen Stoßprozesse thermischer Alkaliatome im Resonanzzustand mit Edelgasatomen im Grundzustand von besonderem Interesse, da hier Potentialverläufe (Pseudopotentialrechnungen /37/,/38/ und experimentell aus Linienflügelmessungen bestimmte Potentialverläufe /39/) bekannt sind (vgl. Fig.20).Dabei interessieren vor allem Depolarisation in und Anregungstransfer zwischen den beiden Alkali Feinstrukturniveaus $n^2P_{1/2}$ und $n^2P_{3/2}$; für diese Prozesse existieren ausgearbeitete Stoßtheorien, sodaß bei bekannten Potentialdaten eine experimentelle Überprüfung der Theorien möglich ist.

Bisherige Untersuchungen anderer Autoren beschränkten sich auf die Bestimmung totaler Querschnitte.Die Resultate sind in einer Reihe von Übersichtsartikeln /9/,/10/ zusammenfassend dargestellt.Kürzlich wurde auch über erste Atomstrahl-Streumessungen berichtet /40/, die differentielle Querschnitte liefern.Gemeinsames Merkmal dieser Untersuchungen ist die Präparation des angeregten Elektronenzustandes des Systems vor dem Stoß, $\Psi(t=-\infty)$,und die Messung des Zustandes nach dem Stoß, $\Psi(t=+\infty)$.Die resultierende Zustandsänderung, die durch die S-Matrix dargestellt wird, ist bei vorgegebenem Stoßparameter b und Relativgeschwindikeit $\bar{v}$

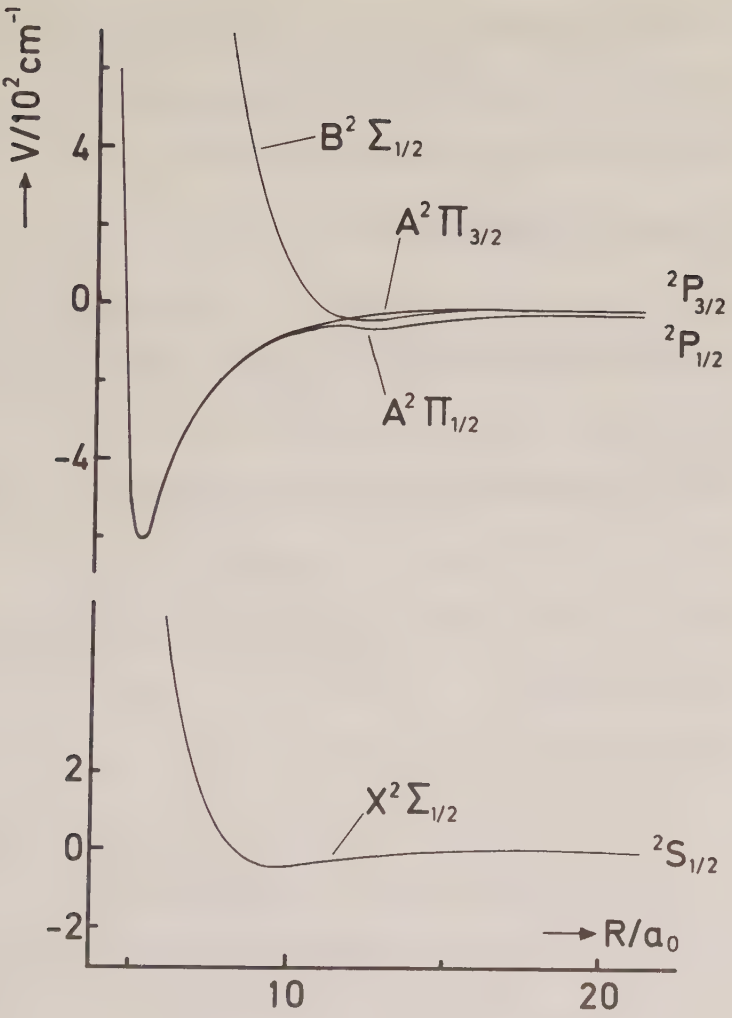

Fig. 20. Adiabatische Potentialkurven für die Na-Ar Wechselwirkung /37/.

allein durch Zeitmittelwerte der interatomaren Störung über die gesamte Stoßzeit bestimmt.Ein solches Experiment liefert jedoch nur wenig Information über die Stoßdynamik, d.h., die zeitliche Änderung des Systemzustandes während des Stoßes.

4.2. Spektroskopie von Halbstößen

Sehr viel mehr Informationen über den Stoßablauf erhält man daher, wenn es gelingt, den angeregten Zustand während des Stoßes zu präparieren.Dies ist möglich durch Absorption von Laserlicht ω_L in den Linienflügeln einer Übergangsfrequenz Ω_{ie} eines der Stoßpartner, falls die Resonanzabweichung $|\omega_L-\Omega_{ie}|$ groß ist gegen die reziproke Stoßdauer τ_c^{-1}.In diesem Fall erfolgt die Anregung bei einem bestimmten Kernabstand $R_L=R(\omega_L)$, bei dem die Laserfrequenz aufgrund des Franck-Condon Prinzips gleich ist der Potentialdifferenz der interatomaren Potentiale

$$\hbar\omega_L = V_i(R_L) - V_e(R_L) \qquad (4.1)$$

Die reemittierte Fluoreszenz enthält dann detaillierte Informationen über die Entwicklung des Systems vom Zeitpunkt der Absorption während des Stoßes bis das Stoßpaar auseinandergeflogen ist und damit über den Potentialverlauf $V_i(R_L)$ im angeregten Zustand.

Macht man das Experiment mit einem Kaltgasgemisch in einer Fluoreszenzzelle, so hat man zwar eine isotrope Geschwin-

digkeitsverteilung vorliegen.Jedoch werden andererseits bei der Präparation des angeregten Zustandes an der Stelle R_L Stoßpaare mit Stoßparametern b kleiner als R_L selektiert (Fig. 21).Durch Variation der Absorptionsfrequenz $\omega_L(R_L)$ kann man daher im Prinzip die Stoßwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von b, also differentielle Querschnitte messen. Voraussetzung dabei ist jedoch, daß Folgestöße während der spontanen Lebensdauer, die nicht b-selektiv sind, möglichst vermieden werden.Dies ist durch hinreichend kleine Teilchendichten realisierbar.

4.2.1. Präparation und Relaxation angeregter Zustände während des Stoßes

Zur Erläuterung des methodischen Prinzips (Fig.22) betrachten wir das aktive Atom A als 3-Niveau-System und präparieren den angeregten Zustand $|1\rangle$ von A im Abstand R_L durch Absorption von Licht der Frequenz ω_L.Nach der Anregung dauert der Stoß an und bewirkt eventuell eine Überführung in einen Nachbarzustand $|2\rangle$ nahe einer Potential-Kreuzung oder -Antikreuzung.Die Wahrscheinlichkeit $\bar{P}_{12}$ für Überführung von $|1\rangle$ nach $|2\rangle$ während der restlichen Wechselwirkungszeit hängt ab vom Ort R_L der Präparation und damit der Frequenz ω_L; sie kann im Prinzip über die Besetzung der beiden Zustände $|1\rangle,|2\rangle$ mittels der hieraus emittierten Fluoreszenz gemessen werden.Dazu ist $\bar{P}_{12}(\omega_L)$ über die Ratengleichungen

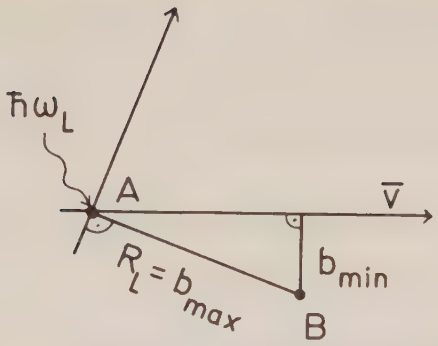

Fig. 21. Stoßparameterintervall bei Anregung eines aktiven Atoms A im Abstand R_L vom Störatom B unter der Annahme geradliniger Trajektorien.

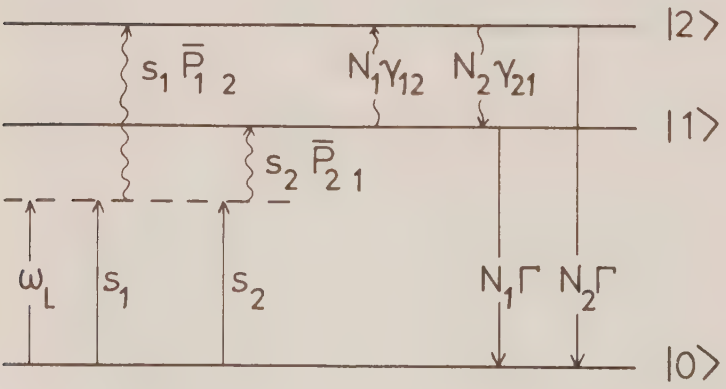

Fig. 22. Zur Besetzung angeregter Zustände durch stoßinduzierte Absorption, Direktübergänge und anschließende Relaxationsprozesse während der spontanen Lebensdauer.

für die Besetzungsdichten $N_1(\omega_L)$, $N_2(\omega_L)$ geeignet zu definieren.Für den Vergleich mit der Theorie ist außerdem die ω_L-abhängige Wahrscheinlichkeit $\bar{P}_{12}(\omega_L)$ mit der Wahrscheinlichkeit $P_{12}(R_L,b)$ für den einzelnen Halbstoß zu korrelieren, die anders als beim Vollstoß außer vom Stoßparameter b auch noch von R_L abhängt.

4.2.2. Bestimmung der Relaxationswahrscheinlichkeit $\bar{P}(\omega_L)$ als Funktion der Absorptionsfrequenz

Zur Definition von $\bar{P}_{12}(\omega_L)$ bzw. $\bar{P}_{21}(\omega_L)$ werden in die Ratengleichungen für $N_1(\omega_L)$ und $N_2(\omega_L)$ frequenzabhängige Raten $\bar{P}_{12}(\omega_L)s_1(\omega_L)$ und $\bar{P}_{21}(\omega_L)s_2(\omega_L)$ für Direktübergänge eingeführt.Diese werden proportional den Anregungsraten $s_1(\omega_L)$, $s_2(\omega_L)$ angesetzt mit den zu definierenden Größen als Proportionalitätsfaktoren.Daneben sind Folgestöße während der spontanen Lebensdauer Γ^{-1} zu berücksichtigen, mit ω_L-unabhängigen Ratenkoeffizienten γ_{12},γ_{21}, die über die Dichte der Störatome möglichst gering zu halten ist.Damit erhält man das folgende Ratengleichungssystem

$$\dot{N}_1(\omega_L) = s_1(\omega_L)-\Gamma N_1(\omega_L)-\bar{P}_{12}(\omega_L)s_1(\omega_L)+\bar{P}_{21}(\omega_L)s_2(\omega_L)- \\ -\gamma_{12}N_1(\omega_L)+\gamma_{21}N_2(\omega_L) \qquad (4.2)$$

$$\dot{N}_2(\omega_L) = s_2(\omega_L)-\Gamma N_2(\omega_L)-\bar{P}_{21}(\omega_L)s_2(\omega_L)+\bar{P}_{12}(\omega_L)s_1(\omega_L)- \\ -\gamma_{21}N_2(\omega_L)+\gamma_{12}N_1(\omega_L)$$

Die Übergangswahrscheinlichkeit

$$\bar{P}_{21}(\omega_L) = \alpha\, \bar{P}_{12}(\omega_L) \tag{4.3}$$

läßt sich darstellen durch das ω_L-abhängige und auf Störteilchendichte Null reduzierte Fluoreszenzverhältnis, das allein durch Direktprozesse (stoßinduzierte Absorption, Direktübergänge) bestimmt ist

$$R_{21}(\omega_L,0) := I_2(\omega_L,0)/I_1(\omega_L,0) \tag{4.4}$$

sowie das Verhältnis der Anregungsraten

$$s_{21}(\omega_L) := s_2(\omega_L)/s_1(\omega_L) \tag{4.5}$$

Unter der Annahme,daß sich die Besetzungsdichten wie die Fluoreszenzintensitäten verhalten, ergibt sich bei stationären Pumpbedingungen aus Gl.(4.2)

$$\bar{P}_{12}(\omega_L) = \frac{R_{21}(\omega_L,0) - s_{21}(\omega_L)}{(1 + R_{21}(\omega_L,0))\,(1 - \alpha s_{21}(\omega_L))} \tag{4.6}$$

Das Fluoreszenzverhältnis $R_{21}(0)$ bei Störteilchendichte Null kann aus Messungen bei verschiedenen Störteilchendichten und Extrapolation auf n=0 erhalten werden

$$R_{21}(x) = \frac{R_{21}(0) + (1 + R_{21}(0))x}{1 + R_{21}(\infty)^{-1}\,(1 + R_{21}(0))x} \tag{4.7}$$

$$x := \frac{\gamma_{12}}{\Gamma} = \frac{\bar{v}\gamma_{12}}{\Gamma}\,n \quad ; \quad R_{21}(\infty) := \frac{\gamma_{12}}{\gamma_{21}}$$

Das Anregungsverhältnis $s_{12}(\omega_L)$ ist durch ein gesondertes Verfahren zu bestimmen, z.B. aus gemessenen Absorptionsprofilen $k(\omega_L) \sim s_1(\omega_L) + s_2(\omega_L)$ und/oder Rechnungen auf der Grundlage der quasistatischen Theorie der Linienverbreiterung /41/.

4.2.3. Transformation der ω_L-Skala in die b-Skala

Die bei der Präparation an der Stelle R_L gemessene Übergangswahrscheinlichkeit $\bar{P}_{12}(\omega_L)$ stellt einen Mittelwert der Wahrscheinlichkeit $P_{12}(b,R_L)$ für Halbstöße über ein endliches Stoßparameterintervall Δb dar.Zur Abschätzung von Δb seien geradlinige Trajektorien bei konstanter mittlerer Relativgeschwindigkeit $\bar{v}$ angenommen.Die untere Intervallgrenze ist dann durch den klassischen Umkehrpunkt auf dem Potential $V_1(R)$ des Ausgangsniveaus $|1\rangle$ approximierbar,also durch $V_1(b_{min})=1/2\ \mu\bar{v}^2$.Die obere Grenze ist durch den Anregungspunkt R_L gegeben, da nur Atome mit $b \leq R_L$ an der Anregung teilnehmen (vgl. Fig.21).Damit erhält man

$$\bar{P}_{12}(\omega_L) = \frac{1}{R_L - b_{min}} \int_{b_{min}}^{R_L} db\ P_{12}(b,R_L) \qquad (4.8)$$

$$\hbar\omega_L = V_1(R_L) - V_0(R_L)$$

$$\frac{1}{2}\mu\bar{v}^2 = V_1(b_{min})$$

Allgemein erfolgt durch Absorption von ω_L Präparation von $|1\rangle$ an mehr als einer Stelle R_i.Dies z.B. ist der Fall, wenn das Differenzpotential Gl.(4.1) Extrema aufweist oder der angeregte Zustand $|1\rangle$ in mehrere Molekülzustände aufspaltet.Dann setzt sich die Gesamtrate für Direktübergänge $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ additiv aus den Einzelbeiträgen für Übergänge von

den verschiedenen R_i aus zusammen

$$\bar{P}_{12}(\omega_L)s_1(\omega_L) = \sum_i \bar{P}_{12}(\omega_L(R_i))s_1(\omega_L(R_i)) \qquad (4.9)$$

Die Übergangswahrscheinlichkeit $\bar{P}_{12}(\omega_L)$ ergibt sich dann durch Summation über die Einzelbeiträge $\bar{P}_{12}(\omega_L(R_i))$ mit den Anregungswahrscheinlichkeiten $a_1(\omega_L(R_i))$ als Gewichtsfaktoren

$$\bar{P}_{12}(\omega_L) = \sum_i a_1(\omega_L(R_i))\bar{P}_{12}(\omega_L(R_i)) \qquad (4.10)$$

$$a_1(\omega_L(R_i)) := \frac{s_1(\omega_L(R_i))}{\sum_i s_1(\omega_L(R_i))} \qquad (4.11)$$

Die $s_1(\omega_L(R_L))$ lassen sich bei Kenntnis der Differenzpotentiale

$$\Delta V_{10}(R) = V_1(R) - V_0(R) \qquad (4.12)$$

mittels der quasistatischen Theorie der Linienverbreiterung /41/ berechnen:

$$s_1(\omega_L(R_i)) \sim \frac{R_i^2}{d(\Delta V_{10}(R_i))/dR_i} \qquad (4.13)$$

4.3. Theorie der Stoßrelaxation

Die in 4.2. skizzierte Methode wurde angewandt auf Stöße von Na-Atomen im Resonanzzustand 3^2P mit Edelgasatomen X im Grundzustand bei thermischer Energien von einigen 10^{-2}eV. Zwei Prozesse wurden näher untersucht:

1) Depolarisation innerhalb der Feinstrukturzustände $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$
2) Feinsrukturüberführung
   $Na\ 3^2P_{1/2}+X \rightleftharpoons Na\ 3^2P_{3/2}+X$

Gemäß Gl.(4.8) ist eine starke Überhöhung der Übergangswahrscheinlichkeit bei kritischen Frequenzen zu erwarten, für die der zugehörige Kernabstand gleich dem Wirkungsradius des betrachteten Prozesses ist.Zur Abschätzung dieser Parameter sind daher zunächst die Mechanismen der genannten Prozesse gesondert zu betrachten.

4.3.1. Relaxationsmechanismen

Depolarisation

Dieser Prozess ist durch zwei unterschiedliche Mechanismen gekennzeichnet: 1) Dephasierung zwischen adiabatischen Molekülzuständen, in die die Atomzustände aufspalten; 2) Rotation des an die internukleare Achse gekoppelten Elektronendrehimpulses.

Zur Erläuterung der Dephasierung eignet sich ein vereifachtes Schema, das sog. Haltepunktmodell (Fig.23), das bereits zur Erklärung der Depolarisation durch Ganzstöße diskutiert wurde /44/.In diesem Modell wird das aktive Atom nichtadiabatisch schnell in den kürzesten Abstand vom Störteilchen gebracht, wo es während der Wechselwirkungszeit τ_c ruht. Während dieser Zeit wird die Störung adiabatisch langsam an- und abgeschaltet.Danach wird das Atom wieder nichtadiabatisch schnell aus der Wechselwirkungszone entfernt.Beim Halbstoß wird nun zur Zeit $t_L = \tau_c/2$ nach Einschalten der Störung Polarisation der atomaren Drehimpulse J=1/2 oder 3/2 durch Absorption von polarisiertem Licht der Frequenz ω_L erzeugt.Dabei sei angenommen, daß ein reiner Zustand $|JM_J\rangle$ präpariert wird, d.h. mit einer bestimmten Projektionsquantenzahl M_J bezüglich einer raumfesten Achse z.Dieser Zustand ist darstellbar durch Superposition von Zuständen $|JM_J\rangle$ die bezüglich der internuklearen Achse z´ definiert sind:

$$|J\ M_J\rangle = \sum_{M_J} D^J_{M_J M_J'}(\alpha)\ |J\ M_J'\rangle' \qquad (4.14)$$

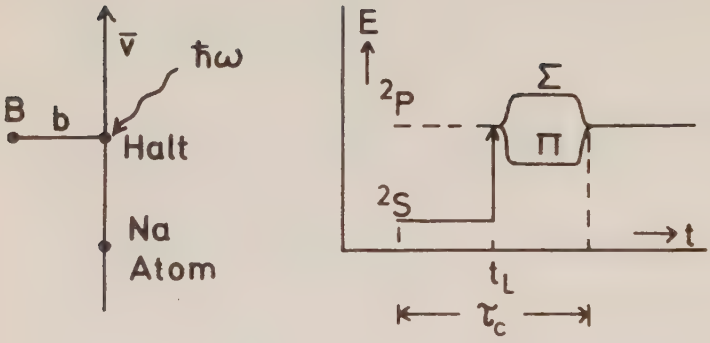

Fig. 23. Zum qualitativen Verständnis der Depolarisation von Na $^2P_{3/2}$-Atomen durch Edelgasstöße: Haltepunktmodell /44/.

wobei α den Winkel zwischen z und z´, $D_{M_J M_J'}(\alpha)$ die Rotationsmatrixelemente bezeichnen.
Im Falle des atomaren $^2P_{3/2}$-Zustandes bewirkt nun die Störung eine Aufspaltung in die beiden Molekülzustände Π und Σ mit unterschiedlicher Zeitentwicklung (Fig.20).Dies bedeutet, nach dem Stoß multiplizieren sich die Koeffizienten des Überlagerungszustandes in Gl.(4.14) mit zwei unterschiedlichen Phasenfaktoren η_Π, η_Σ

$$U(t_L,\infty)\ |\tfrac{3}{2}\ M_J\rangle = \tag{4.15}$$
$$\exp(i\eta_\pi)\left\{ D^{\frac{3}{2}}_{\frac{3}{2}\ M_J}(\alpha)\ |\tfrac{3}{2}\ \tfrac{3}{2}'\rangle + D^{\frac{3}{2}}_{-\frac{3}{2}\ M_J}(\alpha)\ |\tfrac{3}{2}\ -\tfrac{3}{2}'\rangle \right\}$$
$$+\ \exp(i\eta_\Sigma)\left\{ D^{\frac{3}{2}}_{\frac{1}{2}\ M_J}(\alpha)\ |\tfrac{3}{2}\ \tfrac{3}{2}'\rangle + D^{\frac{3}{2}}_{-\frac{1}{2}\ M_J}(\alpha)\ |\tfrac{3}{2}\ -\tfrac{1}{2}'\rangle \right\}$$

$$\eta_{\Pi,\Sigma} = \tfrac{1}{2}\ \tau_c\ (V_{\Pi,\Sigma}/\hbar) \tag{4.16}$$

Der neue Zustand $U(t_L,\infty)|JM_J\rangle$ ist dann kein reiner Zustand mehr, sondern eine Mischung verschiedener M_J, d.h., der Polarisationsgrad hat sich vermindert.Wesentlicher Mechanismus für $^2P_{3/2}$-Depolarisation ist also Dephasierung zwischen den zugehörigen Molekülzuständen.

Demgegenüber wird $^2P_{1/2}$-Depolarisation, wo die Molekülzustände nicht aufspalten, durch Rotation des an die internukleare Achse gekoppelten Elektronendrehimpulses verursacht.Um dies

einzusehen, lassen wir in Erweiterung des oben beschriebenen Stoßmodells eine adiabatisch langsame Drehung $\Delta\alpha$ der internuklearen Achse während der Wechselwirkungszeit τ_c zu.Ein reiner Endzustand $|1/2\ M_J\rangle$ transformiert sich dann durch den Stoß in

$$U(t_L,\infty)\left|\tfrac{1}{2}\ M_J\right\rangle = \exp(i\eta_\pi)\left\{ D^{\frac{1}{2}}_{\frac{1}{2}\ M_J}(\Delta\alpha)\ \left|\tfrac{1}{2}\ \tfrac{1}{2}\right\rangle' + D^{\frac{1}{2}}_{-\frac{1}{2}\ M_J}(\Delta\alpha)\ \left|\tfrac{1}{2}\ -\tfrac{1}{2}\right\rangle' \right\} \qquad (4.17)$$

Da die Rotationsmatrixelemente verschieden sind, mischen die M_J, d.h., es findet eine Depolarisation statt.

Feinstruktur-Überführung

Wesentliche Voraussetzung für die Änderung des Feinstrukturzustandes ist das Aufbrechen der Spin-Bahn-Kopplung während des Stoßes.Dies geschieht im Kernabstandsbereich $R<R_{fs}$ wo die Π-Σ-Aufspaltung die FS-Aufspaltung überwiegt (vgl. Gl.(4.20)).Eine nähere Analyse /7/ zeigt, daß in diesem Bereich das Stoßpaar ein wohldefiniertes Molekül bildet; es ergibt sich, daß die Übergangswahrscheinlichkeit für $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ abhängt von der Π-Σ-Phasendifferenz und dem Rotationswinkel des Moleküls während seiner Existenz.

4.3.2. Wirkungsradien und kritische Absorptionsfrequenzen

$^2P_{3/2}$-Depolarisation

Zur Abschätzung des Wirkungsradius R_d für Π-Σ-Dephasierung wählen wir als kritischen Wert für die Phasendifferenz $\Delta\eta(b)$ den Wert 1/2

$$\Delta\eta(b) := \frac{1}{\hbar} \int_{\tau_c/2} dt \left\{ V_A{}^2\Pi_{3/2}(t) - V_B{}^2\Sigma_{1/2}(t) \right\} = \frac{1}{2} \qquad (4.18)$$

Die Berechnung des Integrals für das Na/Ar erfolgte mit Hilfe der Potentialdaten in Ref./38/, wobei geradlinige Trajektorien und konstante Relativgeschwindigkeit angenommen wurden. Ersetzt man nach der Integration b durch R, so ergibt sich mit $\bar{v} = 7.5 * 10^4$ cm/s für den Wirkungsradius: $R_d = 12.4\ a_o$. Die zugehörige kritische Absorptionsfrequenz $\tilde{\nu}_d$ ergibt sich mittels des $A^2\Pi_{3/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$ -Differenzpotentials und liegt im roten Flügel der Na D_2-Linie bei $\tilde{\nu}_d - \tilde{\nu}_2 = -5.0\ cm^{-1}$.

Der Wirkungsradius R_r für Rotation wird über die Adiabasiebedingung für Kopplung des Elektronendrehimpulses an die internukleare Achse abgeschätzt:

$$\delta(R_r) := V_A{}^2\Pi_{3/2}(R_r) - V_B{}^2\Sigma_{1/2}(R_r) = \hbar \frac{v}{b} \qquad (4.19)$$

Eine Analyse zeigt, daß $\delta(R)$ für Na/Ar in dem interessierenden Gebiet stark variiert, sodaß R_r für gegebenes $\bar{v}$ nahezu unabhängig von b ist.Mit den Potentialdaten von Ref./37/ für Na/Ar erhält man: $R_r = 10.6\ a_o$ und mit dem $A^2\Pi_{3/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$ -Differenzpotential ergibt sich für die kritische Absorptionsfrequenz im roten D_2-Flügel $\tilde{\nu}_r$-$\tilde{\nu}_2 = -13\ cm^{-1}$.

Insgesamt ist also für das betrachtete System bei Anregung im roten D_2-Flügel nahe $-10\ cm^{-1}$ ein starker Anstieg der $^2P_{3/2}$-Depolarisation zu erwarten, der sich in einer entsprechenden Abnahme der Polarisation der D_2-Fluoreszenz äußern sollte.

FS-Uberführung $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$

Der Wirkungsradius R_{fs} ist definiert durch

$$V_\Pi(R_{fs})-V_\Sigma(R_{fs}) = E_{3/2}-E_{1/2} \qquad (4.20)$$

Mit den Potentialdaten /37/ erhält man für Na3P/Ar3S $R_{fs} = 11.4\ a_o$.

Die zugehörige kritische Frequenz ω_{fs} ergibt sich dann mittels des $A^2\Pi_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$ -Differenzpotentials und liegt im roten Flügel der Na D_1-Linie bei $\tilde{\nu}_{fs}$-$\tilde{\nu}_1 \approx -5\ cm^{-1}$.

4.3.3. Wahrscheinlichkeitsfunktionen $\bar{P}_J^{(k)}(\omega_L)$

Zielsetzung ist ein quantitativer Vergleich mit dem Experiment für folgende Prozesse

J	k	Prozess
1/2	0	Feinstrukturüberführung $P_{1/2} \longrightarrow P_{3/2}$
1/2	1	Desorientierung von $P_{1/2}$
3/2	2	Disalignment von $P_{3/2}$

Dazu ist zunächst $P_J^{(k)}(b,R_L,v)$ auf der Grundlage einer geeigneten Stoßtheorie darzustellen.Die Berechnung von $\bar{P}_J^{(k)}(\omega_L)$, d.h. die Transformation der b-Skala in die ω_L-Skala erfolgt dann mit Hilfe von Gln.(4.8)-(4.13).

Theorie von Lewis et al./8/

Es gibt verschiedene Ansätze, über die bereits in Ref. /9/ zusammenfassend berichtet wurde.Wir wählen die semiklassische, adiabatische Theorie von Lewis et al. /8/ aus folgenden Gründen:

1) Die genannten Relaxationsprozesse werden durch ein

einheitliches Stoßmodell beschrieben. 2) In Ref. /8/ werden analytische Ausdrücke für $P_J^{(k)}(b,v)$ angegeben. 3) Die für Ganzstöße hergeleitete Theorie läßt sich auf einfache Weise auf Halbstöße verallgemeinern.

Der Theorie liegt folgendes Modell zugrunde (Fig.24).Der Stoß wird durch einen kritischen Radius R_o in zwei Bereiche aufgeteilt,wobei R_o definiert ist durch

$$\delta(R_o) := V_\Pi(R_o)-V_\Sigma(R_o) = \tau_c^{-1} \simeq \hbar \frac{\bar{v}}{b} \qquad (4.19a)$$

Im Bereich $R < R_o$ bildet das Stoßpaar ein wohldefiniertes Molekül, das um einen Winkel α rotiert und zwischen dessen Zuständen Ω, Ω' Phasenverschiebungen $\Delta\eta_{\Omega,\Omega'}$ stattfinden.Im Bereich $R > R_o$ ist die Rotation vernachlässigbar, und es findet lediglich Dephasierung statt.

Im Falle von Na3P/Ar3S ist im Bereich $R < R_o \approx 10.6\ a_o$ der Hund'sche Kopplungfall (b) realisiert, da $\delta(R_o) \gg E_{3/2}-E_{1/2}$ ist, d.h. hier der Elektronenspin vom Bahndrehimpuls abgekoppelt ist.Für den Bereich $R > R_o$ wird die Gültigkeit des Hund'schen Falls (c) angenommen, obwohl diese Annahme erst für $R > 11.4\ a_o$ erfüllt ist (vgl. 4.3.2.).

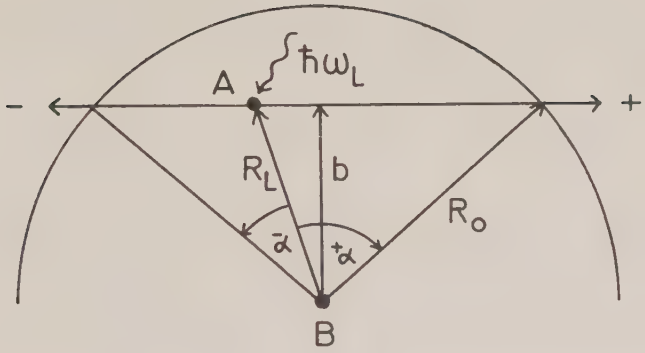

Fig. 24. Relaxationsmodell von Na 3P durch Halbstöße mit Edelgasatomen.Die Präparation des aktiven Atoms A erfolgt durch Photonenabsorption ω_L im Abstand R_L vom Störatom B.Im Bereich $R(t) \leq R_o$ (Wirkungsradius) rotiert das Stoßpaar als wohldefiniertes Molekül um den Winkel $\pm\alpha$.

Herleitung von $P_J^{(k)}(b,R_L,v)$

Dazu wird in Ref./8/ der S-Operator durch den Zeitentwicklungsoperator $U(+\infty,t_L)$ ersetzt

$$\Psi(t=+\infty) = U(+\infty,t_L)\ \Psi(t=t_L) \tag{4.21}$$

wobei angenommen wird, daß $\Psi(t=t_L)$ den ungestörten angeregten atomaren Zustand darstellt, und die Störung zum Zeitpunkt t_L adiabatisch langsam eingeschaltet wird. Bezeichnen $U_q^{(\chi)}$ Multipolkomponenten der $U_c^{(a)}$-Matrix, deren Elemente mit atomaren Basisfunktionen bezüglich eines Stoß-Koordinatensystems berechnet werden, so lautet in Analogie zu Ref. /8/ das allgemeine Resultat

$$P_J^{(k)}(b,R_L,v) = 1 - \Pi_J^{(k)}(b,R_L,v) \tag{4.22a}$$

$$\Pi_J^{(k)}(b,R_L,v) = \sum_{q,\chi} (-1)^{2J+k+\chi} |U_q^{(\chi)}|^2 \begin{Bmatrix} J & J & k \\ J & J & \chi \end{Bmatrix} \tag{4.22b}$$

$$U_q^{(\chi)} = \mathrm{Tr}\ (U_c^{(a)}\ T_q^{(\chi)+}) \tag{4.22c}$$

Anders als bei Ganzstößen hängt $P_J^{(k)}$ außer von R_L auch noch vom Vorzeichen der Flugrichtung ab (Fig.24). Dementsprechend definieren wir

$$P_J^{(k)}(b,R_L,v) = \frac{1}{2}\left\{ {}^{+}P_J^{(k)}(b,R_L,v) + {}^{-}P_J^{(k)}(b,R_L,v)\right\} \tag{4.23}$$

Im Kopplungsfall (b) sind die $^{\pm}P_J^{(k)}$ darstellbar als analytische Funktionen der Rotationswinkel $^{\pm}\alpha(b,R_L,v)$ und der Phasendifferenz $^{\pm}\Delta\eta_{\Omega\Omega}(b,R_L,v)$

$$^{\pm}P_J^{(k)}(b,R_L,v) = f_J^{(k)}\left\{ {}^{\pm}\alpha(b,R_L,v),\ {}^{\pm}\Delta\eta_{\Omega\Omega'}(b,R_L,v)\right\} \quad (4.24)$$

$\underline{R_L \leq R_o}$ (4.24a)

$$^{\pm}\alpha(b,R_L) = \frac{1}{2}\left[\arccos\frac{b}{R_o} \pm \arccos\frac{b}{R_L}\right]$$

$$^{\pm}\Delta\eta_{\Omega\Omega'}(b,R_L) = \frac{1}{\hbar}\left[\int_b^{R_o}\Delta V^{*}_{\Omega\Omega'}(R)dR \pm \int_b^{R_L}\Delta V^{*}_{\Omega\Omega'}(R)dR\right]$$

$\underline{R_L > R_o}$ (4.24b)

$$^{\pm}\alpha(b,R_L) = \frac{1}{2}\left[\arccos\frac{b}{R_o} \pm \arccos\frac{b}{R_o}\right]$$

$$^{\pm}\Delta\eta_{\Omega\Omega'}(b,R_L) = \frac{1}{\hbar}\left[\int_b^{R_o}\Delta V^{*}_{\Omega\Omega'}(R)dR \pm \int_b^{R_o}\Delta V^{*}_{\Omega\Omega'}(R)dR\right]$$

wo $\Delta V^{*}_{\Omega\Omega'}(R) := \left[V_\Omega(R)-V_{\Omega'}(R)\right]*R/\sqrt{b^2-R^2}$ und die $f_J^{(k)}\{\ \}$ in Ref. /8/ definierte Funktionen sind.

Im Kopplungsfall (c) ist speziell für J=3/2, k=2

$$\overset{+}{-}P^{(2)}_{3/2}(b,R_L,v) = \frac{4}{5}\left\{1 - \cos\overset{+}{-}\Delta\eta_{AB}(b,R_L,v)\right\} \qquad (4.25)$$

wo AB die Potentialdifferenz $A^2\Pi_{3/2}$-$B^2\Sigma_{1/2}$ bezeichnet, und zur Berechnung von $\Delta\eta_{AB}$ in Gl.(4.25) die obere Integrationsgrenze R_o durch ∞ zu ersetzen ist.

Für die J=1/2 Besetzungsrelaxation reduziert sich bei Anregung innerhalb R_o die Wahrscheinlichkeit für Halbstöße $P^{(o)}_{1/2} := P(A^2\Pi_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2})$ gegenüber Ganzstößen zusätzlich dadurch, daß von den beiden Kanälen $^2\Pi_{1/2} \rightarrow {}^2\Pi_{3/2}$, $^2\Sigma_{1/2}$ nur einer, nämlich $^2\Pi_{1/2} \rightarrow {}^2\Pi_{3/2}$, offen ist.Nimmt man an, daß der größte Teil der Übergänge $^2\Pi_{1/2} \rightarrow {}^2\Pi_{3/2}$ innerhalb R_o stattfindet, so ergibt sich als effektive Übergangswahrscheinlichkeit

$$\left\{P^{(o)}_{1/2}(b,R_L,v)\right\}_{eff} = \frac{1}{2}\,P^{(o)}_{1/2}(b,R_L,v) \qquad (4.26)$$

Numerische Rechnungen für Na3P/Ar3S

Zur numerischen Berechnung von $P^{(k)}_J(b,R_L,v)$ für das System Na3P/Ar3S gemäß Gln.(4.23) - (4.25) wurden die in Ref./37/ tabellierten Potentialdaten der Molekülzustände $X^2\Sigma$, $A^2\Pi_{3/2}$, $A^2\Pi_{1/2}$ und $B^2\Sigma_{1/2}$ verwendet.Zur Auswertung der Phasenintegrale in Gl.(4.24) wurden geradlinige Tra-

jektorien bei konstanter Relativgeschwindigkeit angesetzt. Bei Annahme der Hund-Kopplung (b) liefert der Bereich $R > R_o$ per definitionem keinen Beitrag zu den Integralen.

Bei der Berechnung der $\bar{P}_J^{(k)}(\omega_L)$ ist zu beachten, daß aufgrund der Besonderheiten der Differenzpotentiale Absorption von ω_L i.a. zu Anregung bei mehreren Kernabständen R_i führt. Beispielsweise erfolgt auf der langwelligen Seite des $(^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2})$-Übergangs im Bereich $\tilde{\nu}_2 - \tilde{\nu}_L < 11.8\ cm^{-1}$ Anregung an 3 verschiedenen Stellen und zwar an einer Stelle des $A^2\Pi_{3/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$-Potentials und an zwei Stellen des $B^2\Sigma_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$-Potentials. Bezeichnen $a_1(AX), a_2(BX), a_3(BX)$ die in Gln.(4.11),(4.13) definierten Anregungswahrscheinlichkeiten sowie $b_{min}(A), b_{min}(B)$ die zugehörigen, in Gl.(4.8) definierten minimalen Stoßparameter, so ergibt sich gemäß Gln.(4.8),(4.10) speziell für die Disalignmentfunktion in diesem Bereich

$$\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\omega_L) = \frac{a_1(AX)}{R_1(AX) - b_{min}(A)} \int_{b_{min}(A)}^{R_1(AX)} db\ P_{3/2}^{(2)}(b, R_1(AX)) + \sum_{i=2}^{i=3} \frac{a_i(BX)}{R_i(BX) - b_{min}(B)} \int_{b_{min}(B)}^{R_i(BX)} db\ P_{3/2}^{(2)}(b, R_i(BX)) \tag{4.27}$$

4.3.4. Resultate der numerischen Rechnung

Die für die drei Prozesse FS-Überführung $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ Disalignment von $^2P_{3/2}$ und Desorientierung von $^2P_{1/2}$ berechneten $\bar{P}_J^{(k)}(\omega_L)$ sind in den Fign.(34),(35) und (36) dargestellt.Zur Interpretation sind außerdem die bei der Anregung der Niveaus beteiligten Differenzpotentiale in der Form $R(\Delta\tilde{\nu}_L)$ dargestellt, wobei die $\Delta\tilde{\nu}_L$ Resonanzabweichungen bezeichnen.

In allen Fällen zeigen die $\bar{P}_J^{(k)}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ in den untersuchten Spektralbereichen einen mittleren Anstieg mit zunehmendem $\Delta\tilde{\nu}_L$.Qualitativ ist dies dadurch zu erklären, daß mit wachsendem $\Delta\tilde{\nu}_L$ der Anregungsabstand R_L allgemein kleiner und dabei der Wirkungsradius unterschritten wird.Darüberhinaus werden quantitativ die $\bar{P}_J^{(k)}(\Delta\tilde{\nu}_L)$-Verläufe wesentlich durch die Variation der Anregungsraten $s(\Delta\tilde{\nu}_L(R_L))$ mit R_L und damit gemäß Gl. (4.13) durch die Besonderheit der beteiligten Differenzpotentiale bestimmt.

FS-Überführung $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ (Fig.34)

Die $^2P_{1/2}$-Anregung ist im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L < 40\ cm^{-1}$ des roten D_1-Flügels durch die beiden Extrema im $A^2\Pi_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$- Differenzpotential gekennzeichnet.Im Bereich unterhalb des Minimums von $\Delta\tilde{\nu}_L(R)$ ist $P_{1/2}^{(o)}$ klein, da hier die Anregung bei $R_L > 17\ a_o$, also weit außerhalb des Wirkungsradius $R_o=10.6a_o$ erfolgt.Zwischen den Extrema ergibt die zunehmende Anregung

im Bereich $R_L < R_o$ einen geringen $\bar{P}^{(o)}_{1/2}$-Anstieg.Oberhalb des Maximums wird $\bar{P}^{(o)}_{1/2}$ groß, weil hier Anregung ausschließlich innerhalb R_o stattfindet.Die Sprünge in $\bar{P}^{(o)}_{1/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ bei den Extrema von $\Delta\tilde{\nu}_L(R_L)$ sind durch Singularitäten in den Anregungsfunktionen $s(\Delta\tilde{\nu}_L(R_L))$ bedingt.Letztere sind jedoch unrealistisch, da die Gültigkeit der quasistatischen Theorie, nach der die $s(\Delta\tilde{\nu}_L(R_L))$ berechnet werden, im Bereich der Extrema von $\Delta\tilde{\nu}_L(R_L)$ verletzt ist.Tatsächlich ist hier die Anregung nicht R-selektiv, sondern über ein gewisses R-Intervall verschmiert, was zu einer Verschmierung der Sprünge in $\bar{P}^{(o)}_{1/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ führt.

$^2P_{3/2}$-Disalignment (Fig.35)

Die Anregung von $^2P_{3/2}$ erfolgt im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L < \Delta\tilde{\nu}_G = 11.8\text{cm}^{-1}$ des roten D_2-Flügels über die molekularen Zustände $A^2\Pi_{3/2}$ und $B^2\Sigma_{1/2}$, im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L > \Delta\tilde{\nu}_G$ dagegen ausschließlich über $A^2\Pi_{3/2}$-Zustände.

Das relativ hohe Plateau von $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L < \Delta\tilde{\nu}_G$ ist bedingt durch das breite Vorläufer-Maximum der $P^{(2)}_{3/2}(b,R_L)$-Funktion für den Einzelstoß (Fig.25), das seinerseits gemäß Gl.(4.25) mit dem Extremum in der Phasenfunktion $\Delta\eta_{AB}(b,R_L)$ für das $A^2\Pi_{3/2}$-$B^2\Sigma_{1/2}$ Differenzpotential korreliert.Der Sprung in $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ bei $\Delta\tilde{\nu}_L=\Delta\tilde{\nu}_G$ ist bedingt durch plötzliche R_L-Abnahme von 14 a_o auf 10.5 a_o, verbunden mit einer entsprechenden Änderung des b-Integrationsintervalls sowie der Anregungswahrscheinlichkeit von $A^2\Pi_{3/2}$ in Gl.(4.27).

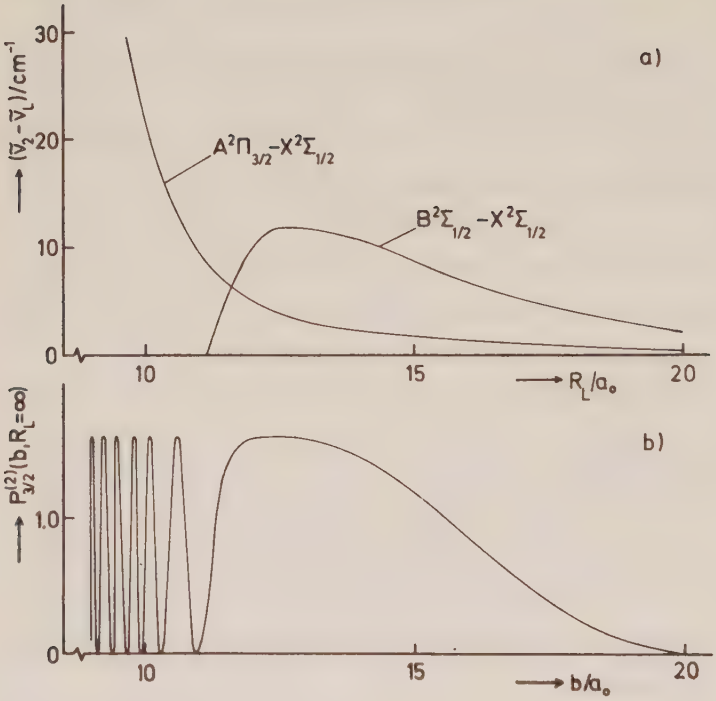

Fig. 25. Zur Erklärung des $^2P_{3/2}$-Disalignments durch Ar-Stöße.

a) Differenzpotentiale /37/ für den roten D_2-Flügel.

b) Wahrscheinlichkeit für $^2P_{3/2}$-Disalignment als Funktion des Stoßparameters; Rechnung für den Kopplungsfall (c) nach Gl.(4.25); Anregung bei $R_L = \infty$.

Im Kopplungsfall (c) geht der Sprung abwärts, weil $P^{(2)}_{3/2}(R_L)$ an der Stelle 10.5 a_o ein Minimum durchläuft, das mit dem Nulldurchgang von $\Delta\eta_{AB}(b,R_L)$ an dieser Stelle (nahezu b-unabhängig) korreliert.Im Kopplungsfall (b) erfolgt dagegen der Sprung aufwärts, weil bei 10.5 $a_o < R_o = 10.6\ a_o$ die Anregung, anders als bei 14 a_o, innerhalb der Wirkungssphäre R_o stattfindet.Der Anstieg von $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_G < \Delta\tilde{\nu}_L < 30\ cm^{-1}$ korreliert mit demjenigen der Phasenfunktion $\Delta\eta_{\Omega\Omega'}(b,R_L)$ im Intervall $0 \leq \Delta\eta \leq 2\pi$, $b < b_o$, diesseits der Nullstellen $\Delta\eta_{\Omega\Omega'}(b_o,R_L)=0$.Oberhalb 30 cm^{-1} (in Fig.35 nicht zu sehen) konvergiert $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ schwach oszillierend gegen den nach Gl.(4.25) zu erwartenden Mittelwert 4/5.

$^2P_{1/2}$-Desorientierung (Fig.37)

Ebenso wie bei der $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$-Überführung erfolgt die Anregung von $^2P_{1/2}$ durch Absorption im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L < 40 cm^{-1}$ des roten D_1-Flügels, der durch das $A^2\Pi_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$-Differenzpotential gebildet wird.Es ergibt sich, daß der Anstieg der Desorientierung $\bar{P}^{(1)}_{1/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ in diesem Bereich qualitativ mit demjenigen der Feinstrukturüberführung $\bar{P}^{(1)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ übereinstimmt (Fig.37).Dies liegt daran, daß das Aufbrechen der Spin-Bahn-Kopplung durch das Molekülfeld gemeinsame Voraussetzung für beide Prozesse ist, was in dem hier angenommen Hund´schen Fall (b) zu ähnlichen Ausdrücken für Dephasierung und Rotation in Gl.(4.24) führt.

4.4. Wahrscheinlichkeitsfunktionen

4.4.1. FS-Überführungng $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$

Die Auswertung der Wahrscheinlichkeitsfunktion $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\omega_L)$ $:=\bar{P}^{(o)}_{1/2}(\omega_L)$ aus den Messungen erfolgte auf der Grundlage des in 4.2.2. beschriebenen allgemeinen Verfahrens in zwei Schritten: 1) Bestimmung des auf Störteilchendichte n=0 reduzierten Intensitätsverhältnisses $R_{21}(\omega_L,n=0)$ $:=I_{D2}(\omega_L,0)/I_{D1}(\omega_L,0)$ der D_2-CIF und D_1-CIF als Funktion der Laserfrequenz ω_L; 2) Bestimmung des ω_L-abhängigen Anregungsverhältnisses $s_{21}(\omega_L):= s_{3/2}(\omega_L)/s_{1/2}(\omega_L)$ von $^2P_{3/2}$ und $^2P_{1/2}$ Zuständen. Aus beiden Funktionen ergibt sich die gesuchte Funktion $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\omega_L)$ mittels Gl.(4.6).

Fluoreszenzverhältnis $R_{21}(\omega_L,0)$

Zu seiner Bestimmung wird $R_{21}(\omega_L,n)$ bei verschiedenen n gemessen und im Prinzip auf n=0 extrapoliert. Die Größenordnung von n ist dabei so zu wählen, daß die Zahl $x:=\gamma_{1/23/2}/\Gamma$ der Folgestöße während der spontanen Lebensdauer $\lesssim 1$ ist. Für Argon bei Zellentemperatur 420 K ergeben sich daraus Partialdrücke im Torr-Bereich. Praktisch wird $R_{21}(\omega_L,0)$ aus der Steigung der Funktion F(x) ausgewertet, die sich durch Transformation von Gl.(4.7) ergibt

$$F(x) := \frac{1}{R_{21}-R_{21}(\infty)} = \frac{1}{R_{21}(\infty)} \left\{ \frac{1 + R_{21}(o)}{R_{21}(o)-R_{21}(\infty)} \right\} x + \frac{1}{R_{21}(o)-R_{21}(\infty)}$$

$$x := \frac{\gamma^{(o)}_{1/23/2}}{\Gamma} \quad ; \qquad R_{21}(\infty) := \frac{\gamma^{(o)}_{1/23/2}}{\gamma^{(o)}_{3/21/2}} \tag{4.28}$$

Die in Gl.(4.28) auftretenden Raten $\gamma^{(o)}_{1/23/2}, \gamma^{(o)}_{3/21/2}$ für Folgestöße wurden aus einer separaten Messung bei Anregung in den Lorentzflügeln der D_1- und D_2-Linie gewonnen. Aus Gl.(4.7) ergibt sich unter der Voraussetzung $x \gtrsim 1$ im Lorentzflügel der D -Linie ($R_{21}(\omega_L,0) \ll 1$)

$$R_{21} = \frac{\gamma^{(o)}_{1/23/2}}{\Gamma + \gamma^{(o)}_{3/21/2}} \tag{4.29}$$

und bei Anregung im Lorentzflügel der D_2-Linie ($R_{12}(\omega_L,0) \ll 1$)

$$R_{12} = \frac{\gamma^{(o)}_{3/21/2}}{\Gamma + \gamma^{(o)}_{1/23/2}} \tag{4.30}$$

Die Messung von R_{21} und R_{12} unter diesen Voraussetzungen liefert dann mittels Gln.(4.29),(4.30) die gewünschten Größen.

Anregungsverhältnis $s_{21}(\omega_L)$

Eine rein experimentelle Bestimmung des ω_L-abhängigen Ratenverhältnisses $s_{21}(\omega_L) := s_{3/2}(\omega_L)/s_{1/2}(\omega_L)$ für Anregung der beiden FS-Zustände $^2P_{3/2}$ und $^2P_{1/2}$ ist nicht möglich. Die Messung des Absorptionsprofils $k(\omega_L) \sim s_{3/2}(\omega_L)+s_{1/2}(\omega_L)$ liefert nur die Summe beider Raten, da Absorption von $\hbar\omega_L$ zur Anregung beider Zustände führt; Information aus den Fluoreszenzfunktionen $I_2(\omega_L), I_1(\omega_L)$ können nur mittels der Redistributionstheorie bei Kenntnis der ω_L-abhängigen Stoßraten erhalten werden. Dagegen bietet sich eine Berechnung von $s_{21}(\omega_L)$ auf der Grundlage der quasistatischen Theorie der Linienverbreiterung aus bekannten Potentialfunktionen an (vgl. 4.2.3). Danach ist die Rate für Anregung des Molekülzustandes Ω^* aus dem Grundzustand Ω an der Stelle R_i gegeben durch /41/

$$s_{\Omega^*}(\omega_L(R_i)) = C \frac{g_{\Omega^*}}{g_j} \frac{4\pi R_i^2}{d\omega_L/dR_i} \exp\left[-(V_\Omega(R_i)-V_\Omega(\infty))/kT\right]$$

$$C := \frac{\pi}{2} \frac{c^2}{\omega_L^2} n_A n_P \qquad (4.31)$$

$$\hbar\omega_L = V_{\Omega^*}(R_i) - V_\Omega(R_i)$$

wo n_A, n_P Teilchendichten für aktives Aton A und Störatom P bezeichnen, sowie g_{Ω^*}, g_j statistische Gewichte, wobei sich j auf den Grundzustand von A bezieht. Allerdings ergibt

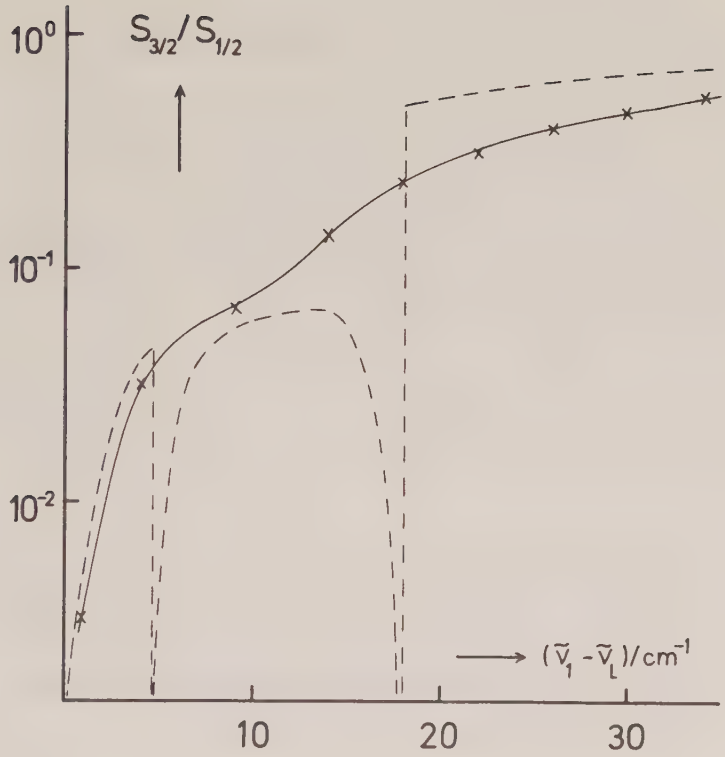

Fig. 26. Anregungsverhältnis der $^2P_{3/2}$, $^2P_{1/2}$ FS-Niveaus von Natrium bei Variation der Laserfrequenz im roten D_1-Flügel.

---- Rechnung nach der quasistatischen Theorie (QST) mittels Na/Ar-Potentialdaten /37/;

-x-x- aus gemessen Absorptionsprofilen /36/ und Rechnung nach der QST.

die Berechnung von $s_{1/2}(\omega_L)$ nach Gl.(4.31) Singularitäten (Fig.26), da das $A^2\Pi_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$-Differenzpotential im interessierenden Bereich des roten D_1-Flügels bei 4 cm^{-1} und 18 cm^{-1} Extrema aufweist.Deshalb wurde $s_{1/2}(\omega_L)$ aus der Messung von $k(\omega_L)$, kombiniert mit der nach Gl.(4.31) berechneten $s_{3/2}(\omega_L)$-Funktion bestimmt, die wegen des monotonen Verlaufs des $A^2\Pi_{3/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$ Potentials frei von Singularitäten ist:

$$s_{21}(\omega_L) = \frac{1}{k(\omega_L)/s_{3/2}(\omega_L) - 1} \qquad (4.32)$$

Die Daten für $k(\omega_L)$ wurden aus Ref./36/ entnommen.Die Funktion $s_{3/2}(\omega_L)$ wurde mit Potentialdaten aus Ref./37/ mittels Gl.(4.31) berechnet; die statistischen Gewichte in Gl.(4.31) sind 2 für den molekularen Zustand $A^2\Pi_{3/2}$ und 4 für den atomaren $3^2S_{1/2}$-Zustand mit HF-Struktur F=1,2.

Das Resultat für $s_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ in Fig.(26) demonstriert zunehmende Anregung von $^2P_{3/2}$ relativ zu $^2P_{1/2}$ über die Linienflügel mit wachsender Entfernung $\Delta\tilde{\nu}_L$ von der D_1-Resonanz. $s_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ konvergiert gegen 1 für $\Delta\tilde{\nu}_L$ groß gegen die FS-Aufspaltung, in Übereinstimmung mit der Erwartung (vgl. Gl. (4.31) und Potentialkurven Fig.20).Die leichte Einsattelung bei 10 cm^{-1} reflektiert den etwa an der gleichen Stelle auftretenden Satelliten im Absorptionsprofil $k(\Delta\tilde{\nu}_L)$.Letzterer wird durch die Extrema des $A^2\Pi_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$ Differenzpoten-

tials erzeugt, die ihrerseits die Singularitäten von $s_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ bei 4 cm^{-1} bzw. 18 cm^{-1} verursachen.

Wahrscheinlichkeitsverhältnis $\alpha := P^{(o)}_{3/21/2}/P^{(o)}_{1/23/2}$

Zu seiner Bestimmung ist die Beteiligung mehrerer Kanäle bei Übergängen aus dem angeregten Molekülzustand in den atomaren Endzustand zu berücksichtigen.Das bedeutet, daß α i.a. ω_L-abhängig ist.Setzt man jedoch Anregung innerhalb der Wirkungssphäre, $R_L < R_o$, voraus, wo Π-Σ Übergänge per definitionem verboten sind und nimmt an, daß nach der Anregung Übergänge ausschließlich im Bereich $R < R_o$ erfolgen, so ergibt sich

$$\bar{P}^{(o)}_{3/21/2} := \bar{P}(^2\Pi_{3/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}) = \bar{P}(^2\Pi_{3/2} \rightarrow {}^2\Pi_{1/2})$$

$$\bar{P}_{1/23/2} := \bar{P}(^2\Pi_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}) = \bar{P}(^2\Pi_{1/2} \rightarrow {}^2\Pi_{3/2})$$

Da beide Π-Zustände gleiches statistisches Gewicht besitzen, folgt damit aus dem Prinzip des detaillierten Gleichgewichts

$$\alpha = 1 \qquad (4.33)$$

4.4.2. Depolarisation von $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$

Die Definition der ω_L-abhängigen Depolarisationswahrscheinlichkeiten $\bar{P}_J^{(k)}(\omega_L)$ erfolgt mittels der Bilanzgleichungen (2.15) für die Multipolkomponenten $\rho_J^{(k)}$. Dazu werden ω_L-abhängige Polarisationserzeugungsraten $s_J^{(k)}(\omega_L)$ und Relaxationsraten $\bar{P}_J^{(k)}(\omega_L)s_J^{(k)}(\omega_L)$ während absorptionsinduzierender starker Stöße sowie ω_L-unabhängige Raten $\gamma_J^{(k)}$ für Folgestöße eingeführt. Bei der Bilanzierung der Polarisation (k=1,2) sind außer der Relaxation $\gamma_J^{(k)}$ auch der Polarisationstransfer $\gamma_{JJ'}^{(k)}$ zwischen den Feinstruktur-Zuständen, J,J' sowie der Einfluß der Hyperfein-Wechselwirkung auf die Relaxation zu beachten. Letzterer kann durch Abkopplung des Kernspins mittels eines äußeren Magnetfeldes ausgeschaltet oder durch nachträgliche theoretische Korrektur berücksichtigt werden. Außerdem ist die Besetzung (k=0) des betreffenden FS-Zustandes zu bilanzieren, da die primäre Meßgröße, nämlich der Polarisationsgrad der CIF, durch die Polarisation pro Atom $\rho_J^{(k)}/\rho_J^{(o)}$ bestimmt ist.

$^2P_{3/2}$-Disalignment

In Abwesenheit von HF-Wechselwirkung lautet die Bilanz für das $^2P_{3/2}$-Alignment $\rho_{3/2}^{(2)}$ bei Anregung mit linear polarisiertem Licht $s_{3/2}^{(2)}(\omega_L)$ und Disalignmentstößen mit den Raten $\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\omega_L)s_{3/2}^{(2)}(\omega_L)$ und $\gamma_{3/2}^{(2)}$

$$\dot{\rho}^{(2)}_{3/2}(\omega_L) = s^{(2)}_{3/2}(\omega_L) - (\Gamma+\gamma^{(2)}_{3/2})\rho^{(2)}_{3/2}(\omega_L) -$$

$$- \bar{P}^{(2)}_{3/2}(\omega_L)s^{(2)}_{3/2}(\omega_L) \qquad (4.34)$$

Transfer von Alignment zwischen $^2P_{3/2}$ und $^2P_{1/2}$ findet nicht statt,da der $^2P_{1/2}$-Zustand kein Alignment aufnehmen kann.Die Bilanz für $^2P_{3/2}$-Besetzung $\rho^{(o)}_{3/2}$ mit Raten $\gamma^{(o)}_{3/21/2}$, $\gamma^{(o)}_{1/23/2}$ für $^2P_{3/2} \longrightarrow {}^2P_{1/2}$ Übergänge lautet

$$\dot{\rho}^{(o)}_{3/2}(\omega_L) = s^{(o)}_{3/2}(\omega_L) - (\Gamma+\gamma^{(o)}_{3/21/2})\rho^{(o)}_{3/2}(\omega_L) +$$

$$+ \gamma^{(o)}_{1/23/2}\rho^{(o)}_{1/2}(\omega_L) \qquad (4.35)$$

wenn angenommen wird, daß ω_L-abhängige Direktübergänge vernachlässigbar sind.Das Verhältnis der Erzeugungsraten für k=0,2 ist /9/

$$s^{(2)}_{3/2}(\omega_L)/s^{(o)}_{3/2}(\omega_L) = -1 \qquad (4.36)$$

Nimmt man außerdem

$$\rho^{(o)}_{3/2}(\omega_L)/\rho^{(o)}_{1/2}(\omega_L) = R_{21}(\omega_L) \qquad (4.37)$$

an, so ergibt sich unter stationären Anregungs- und Beobachtungsbedingungen aus Gln.(4.34)-(4.37) mit Gl.(2.19) für den linearen Polarisationsgrad der D_2-CIF

$$P_2^{\pi}(n,\omega_L) = 3\left\{1 + 4(1-\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\omega_L))^{-1} F_{3/2}^{(2)}(n,\omega_L)\right\}^{-1} \quad (4.38)$$

wobei die Funktion

$$F_{3/2}^{(2)}(n,\omega_L) := \frac{1 + \gamma_{3/2}^{(2)}/\Gamma}{1 + \gamma_{3/21/2}^{(o)}/\Gamma - R_{21}(\omega_L)\gamma_{1/23/2}^{(o)}/\Gamma} \quad (4.39)$$

$$\gamma_{1/23/2}^{(o)} := n\,\bar{v}\,\sigma_{1/23/2}^{(o)} \quad ; \quad \gamma_{3/2}^{(2)} := n\,\bar{v}\,\sigma_{3/2}^{(2)}$$

den Einfluß der Folgestöße darstellt.Es ist $F_{3/2}^{(2)}(0,\omega_L)=1$. Aus Gln.(4.38),(4.39) folgt schließlich für die gesuchte Disalignmentwahrscheinlichkeit

$$\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\omega_L) = 1 - \left\{4P_2^{\pi}(n,\omega_L)/(3-P_2^{\pi}(n,\omega_L))\right\} F_{3/2}^{(2)}(n,\omega_L) \quad (4.40)$$

Der für die Auswertung von $\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\omega_L)$ mittels Gln.(4.40), (4.39) benötigte totale Disalignmentquerschnitt $\sigma_{3/2}^{(2)}$ wurde aus einer gesonderten Messung von P_2^{π} im D_2-Lorentzflügel bestimmt.Dort ist $\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\omega_L) \ll 1$ und P_2^{π} unabhängig von ω_L (Fig.19), sodaß sich Gl.(4.38) reduziert auf

$$P_2^{\pi}(n) = 3\,(1 + 4\,F_{3/2}^{(2)}(n))^{-1} \quad (4.41)$$

$\sigma^{(2)}_{3/2}$ erhält man dann aus der P^{π}_{2}-Messung mittels Gln.(4.41), (4.39) und den bereits in 4.4.1. bestimmten Transferquerschnitten $\sigma^{(o)}_{3/21/2}$, $\sigma^{(o)}_{1/23/2}$.

$^2P_{1/2}$-Desorientierung

Es wurde die Dipolrelaxation nicht bei $^2P_{3/2}$-Atomen sondern bei $^2P_{1/2}$-Atomen untersucht aus zwei Gründen: 1) Im J=1/2 Zustand werden bei Anregung mit zirkularem Licht, anders als bei J=3/2, außer dem Dipolmoment keine höheren Momente erzeugt.2) Die Dipolerzeugung erfolgt, anders als bei $^2P_{3/2}$ nur über einen einzigen molekularen Zustand, nämlich $A^2\Pi_{1/2}$ Beide Umstände vereinfachen die quantitative Interpretation der Ergebnisse.

Bei abgekoppeltem Kernspin lautet, analog zu Gl.(4.34), die Bilanz für $^2P_{1/2}$-Orientierung $\rho^{(1)}_{1/2}$

$$\dot{\rho}^{(1)}_{1/2}(\omega_L) = s^{(1)}_{1/2}(\omega_L) - (\Gamma+\gamma^{(1)}_{1/2}+\gamma^{(1)}_{1/23/2})\rho^{(1)}_{1/2}(\omega_L) - \\ - \bar{P}^{(1)}_{1/2}(\omega_L)s^{(1)}_{1/2}(\omega_L) \qquad (4.42)$$

wo $\gamma^{(1)}_{1/23/2}$ die Rate für Orientierungstransfer J=1/2 nach J=3/2 bedeutet.Die Rate für den Transfer in der Gegenrichtung wurde wegen $\gamma^{(1)}_{3/21/2}/\gamma^{(1)}_{1/23/2} \approx 0.05$ vernachlässigt.

Die Bilanz für die $^2P_{1/2}$-Besetzung $\rho^{(o)}_{1/2}$ lautet, analog zu Gl.(4.35)

$$\dot{\rho}^{(o)}_{1/2}(\omega_L) = s^{(o)}_{1/2}(\omega_L) - (\Gamma+\gamma^{(o)}_{1/23/2})\rho^{(o)}_{1/2}(\omega_L) + \\ + \gamma^{(o)}_{3/21/2}\rho^{(o)}_{3/2}(\omega_L) \qquad (4.43)$$

wobei wieder ω_L-abhängige Direkt-Entvölkerung vernachlässigt wird.Das Verhältnis der Erzeugungsraten für k=0,1 ist /9/

$$s^{(1)}_{1/2}(\omega_L)/s^{(o)}_{1/2}(\omega_L) = 1 \qquad (4.44)$$

Unter stationären Anregungs- und Beobachtungsbedingungen ergibt sich dann aus Gln.(4.42)-(4.44) für den zirkularen Polarisationsgrad der D_1-CIF

$$P^{\sigma}_1(n,\omega_L) = (1 - \bar{P}^{(1)}_{1/2}(\omega_L)) \left\{F^{(1)}_{1/2}(n,\omega_L)\right\}^{-1} \qquad (4.45)$$

mit

$$F^{(1)}_{1/2}(n,\omega_L) := \frac{1 + \gamma^{(1)}_{1/2}/\Gamma + \gamma^{(1)}_{1/23/2}/\Gamma}{1 + \gamma^{(o)}_{1/23/2}/\Gamma - R_{21}(\omega_L)\gamma^{(o)}_{3/21/2}/\Gamma} \qquad (4.46)$$

$$\gamma^{(k)}_{1/2} = n\,\bar{v}\,\sigma^{(k)}_{1/2}$$

und für die gesuchte Desorientierungswahrscheinlichkeit

$$\bar{P}^{(1)}_{1/2}(\omega_L) = 1 - P^{\sigma}_{1}(n,\omega_L)\, F^{(1)}_{1/2}(n,\omega_L) \qquad (4.47)$$

Analog zum Disalignment-Fall wurde der totale Desorientierungsquerschnitt $\sigma^{(1)}_{1/2}$ aus einer gesonderten P^{σ}_{1}-Messung im roten D_1-Lorentzflügel ($\bar{P}^{(1)}_{1/2}(\omega_L) \ll 1$; P^{σ}_{1} unabhängig von ω_L) bestimmt mittels

$$P^{\sigma}_{1}(n) = \left\{ F^{(1)}_{1/2}(n) \right\}^{-1} \qquad (4.48)$$

Anders als im Disalignment-Fall wurde jedoch der Kernspin nicht durch ein äußeres Feld abgekoppelt. Stattdessen wurde der bei Anwesenheit von HF-Wechselwirkung gemessene Polarisationsgrad $P^{\sigma}_{1|I=3/2}$ mittels eines Korrekturfaktors auf den Polarisationgrad ohne HF-Wechselwirkung umgerechnet/45/

$$P^{\sigma}_{1}\Big|_{I=0} = \frac{8 + \gamma^{(1)}_{1/2}/\Gamma}{3 + \gamma^{(1)}_{1/2}/\Gamma}\, P^{\sigma}_{1}\Big|_{I=3/2} \qquad (4.49)$$

Gemäß Gl.(4.49) ist $P^{\sigma}_{1|I=3/2} < P^{\sigma}{}_{|I=0}$, in Übereinstimmung mit der anschaulichen Überlegung, daß die Präzessionsbewegung des Elektronendrehimpulses J=1/2 als Folge der HF-Wechselwirkung die J=1/2 Orientierung vermindert.

4.5 Experimentelle Anordnung

Die verwendete Versuchsanordnung (Fig.27) war ähnlich derjenigen für die Experimente über Redistribution.Der wesentliche Unterschied bestand in einem anderen Konzept der Natrium-Zelle.Für die Messung der Fremdgas-Teilchenzahlabhängigkeit der CIF erschien eine Zelle mit On-Line-Anschluß an ein Vakuum-Gasverteiler-System geeigneter als indviduell zu präparierende Quarzzellen.Die Messung der Zirkularpolarisation der Streustrahlung in Rückwärtsrichtung erforderte außerdem eine andere Zellengeometrie.

4.5.1. Natriumzelle

Geometrie

Die heizbare Zelle (Fig.28) aus V2A-Stahlrohr, 300 mm Länge, 50 mm Durchmesser, besitzt wassergekühlte, abnehmbare Fenster aus Duranglas.Zur Vermeidung intensiven Primärstreulichts auf dem Beobachtungsfenster wurde die Eintrittstelle des Lasers über ein 100 mm langes, außen geschwärztes Glasrohr nach rückwärts verlegt.Auf der Austrittsseite wurde ein Wood-Horn als Lichtfalle angebracht.Das Glasrohr auf der Eintrittseite vermindert drastisch den Öffnungswinkel des ins Zelleninnere gestrahlten Streulichts.Demselben Zweck dienen zusätzliche Blenden aus Neutralgrauglas (Transmission $<10^{-4}$).Die Verwendung von Brewsterfenstern verbot sich wegen der Untersuchungen mit zirkularem Licht.

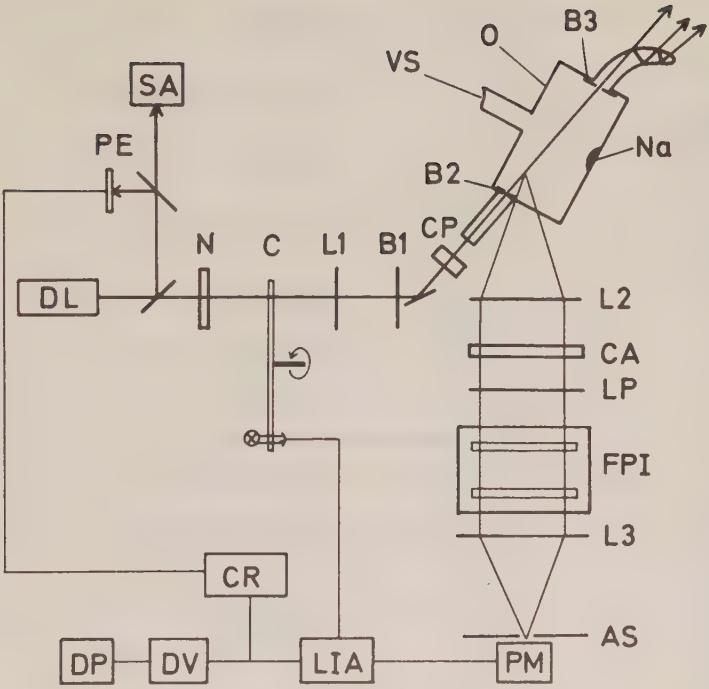

Fig. 27. Apparatur zur Untersuchung von Feinstrukturüberführung und Dipolrelaxation.

DL Dye-Laser; SA Spektrum-Analysator; PE Fotozelle; N Neutralgraufilter; C Chopper; L1,L2,L3 Linsen; B1,B2,B3 Lochblenden; CP Zirkularpolarisator; VS Verbindung zum Vakuumsystem; O Ofen; Na Natriumvorrat; CA Zirkularanalysator; LP Linearpolarisator; FPI Fabry-Perot-Interferometer; AS Meßblende; PM Foto-Multiplier; LIA Lock-In Verstärker; CR Schreiber; DV Analog-Digital Wandler; DP Lochstreifenstanzer.

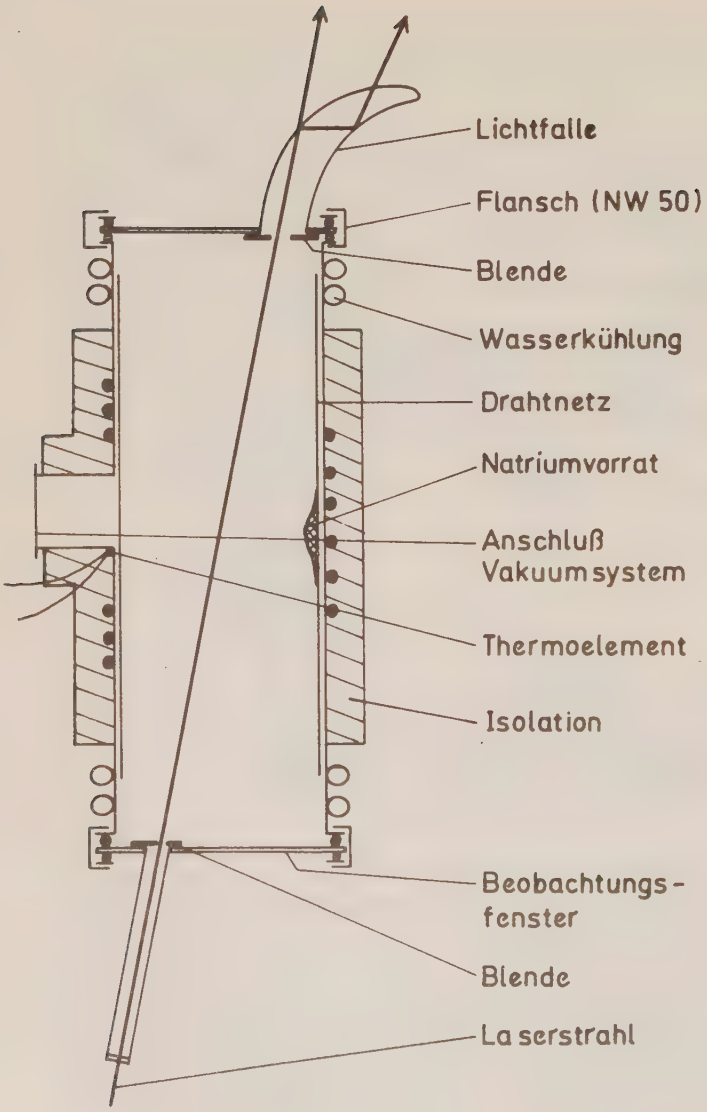

Fig. 28. Schematischer Aufbau der Stahlzelle.

Füllung mit Natriumdampf/Edelgas

Die Heizung der Zelle erfolgte ohm´sch über einen Tyristorregler /G14/.Die Temperatur wurde mittels Thermoelement gemessen.Um eine separate Destillation zu ersparen, erfolgte die Reinigung des Na in der Zelle selbst und zwar mittels des Heat-Pipe-Verfahrens .Dazu befinden sich im Rohrinneren mehrere Lagen Edelstahlgewebe (0.2 mm Maschenweite). Dieser "Docht" bewirkt den Rücktransport des an den Enden kondensierten Na, wobei Verunreinigungen im Bereich der kalten Außenzonen zurückbleiben.Die Technik der Benetzung des Gewebes mit flüssigem Na wird detailliert in /46/ beschrieben.Zur Evakuierung und Füllung der Zelle mir Edelgas diente ein Vakuum-Pumpstand mit parallelem Gasverteilersystem.Die Edelgas-Druckmessung erfolgte kapazitiv /G17/ mit 2-3% Fehler.Bei Na-Partialdrucken $\approx 10^{-6}$ Torr (420 K) und Edelgasdrucken 0.5-5 Torr arbeitet die Zelle nicht als reine Heat-Pipe.

Axiale Temperaturverteilung

Die Untersuchung der Abhängigkeit der Fluoreszenzintensität von der Fremdgas-Teilchendichte erfordert deren genaue Kenntnis am Ort deS Anregungsvolumens.Dazu wurde der Temperaturverlauf und damit der Dichteverlauf in axialer Richtung des Rohres gemessen.Die Messung erfolgte mittels eines in der Rohrachse vakuumdicht verschiebbaren Thermoelements. Die gemessenen T-Verläufe (Fig.29) unterscheiden sich aufgrund unterschiedlichen Wärmetransports erheblich für verschiedene Fremdgasdrucke, schneiden sich jedoch in einem

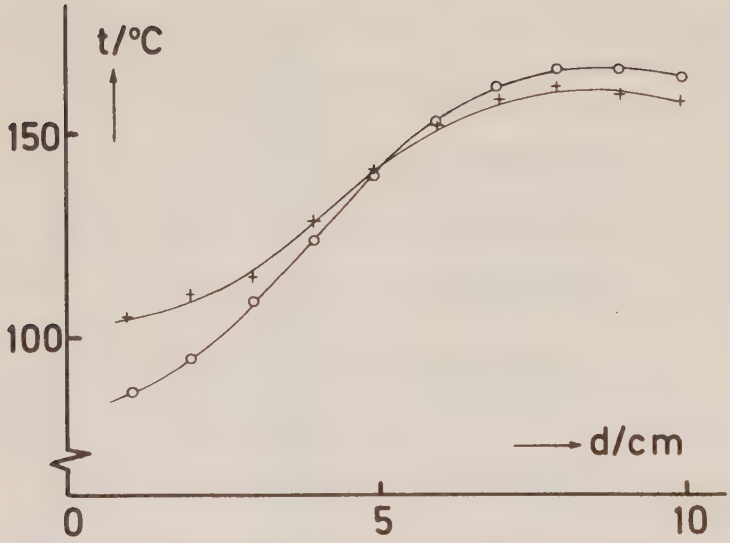

Fig. 29. Axiales Temperaturprofil der Stahlzelle bei verschiedenen Ar-Drucken.
d=0 ist die Position des Beobachtungsfensters; Temperaturanzeige des externen Thermoelements (vgl. Fig. 28): 135°C.

-+-+- 1 Torr
-o-o- 3 Torr

Abstand ≈6 cm vom Beobachtungsfenster.Strahlung aus einem kleinen Volumen an dieser Stelle wurde im Fluoreszenzexperiment auf den Detektor abgebildet.

4.5.2. D_2/D_1-Fluoreszenzverhältnis

Zur Untersuchung der $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$-Stoßüberführung wurde das Intensitätsverhältnis der D_1- und D_2-CIF bei Variation der Anregung im Bereich des roten D_1-Flügels gemessen.Dazu wurden mit einem piezo-gesteuerten FPI nacheinander einzeln die Profile der D_1- und D_2-CIF nahe ihrer Maxima abgetastet (Scanzeit pro Komponente ≈ 1 min, Integrationszeit 1s).Zur Kontrolle der FPI Justierung wurde anschließend noch eines der Maxima benachbarter Ordnung gemessen.Geringe Intensitätsunterschiede in den Ordnungen von maximal 10% durch Dejustierung am Ende der gesamten Meßzeit von typisch einer Stunde wurde bei der Auswertung in geeigneter Weise berücksichtigt.Aus Intensitätsgründen erfolgte die Messung ohne Analysatoren im Fluoreszenz-Strahlengang.Eine mögliche Polarisationsabhängigkeit der Detektorempfindlichkeit ist jedoch irrelevant, da sowohl die D_1- als auch die D_2-CIF bei π-Anregung im untersuchten Bereich des D_1-Flügels praktisch unpolarisiert ist.

Zur Erhöhung des Fluoreszenzsignals wurde bei erhöhten Na-Dichten ($4*10^{11}$ cm^{-3}) gemessen, bei denen allerdings bereits Reabsorption in nicht mehr optisch dünner Schicht stattfindet.Der Einfluß der Reabsorption auf das Fluoreszenzverhältnis $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L) := I_2(\Delta\tilde{\nu}_L)/I_1(\Delta\tilde{\nu}_L)$ ist jedoch unab-

hängig von der Anregungsfrequenz $\Delta\tilde{\nu}_L$ und kann eliminiert werden.Dazu wurde zunächst R_{21} bei geringer Resonanzabweichung $\Delta\tilde{\nu}_L = \Delta\tilde{\nu}_o$, d.h. bei hohem Fluoreszenzsignal, als Funktion der Zellentemperatur T, bzw. der Na-Teilchendichte $n_{Na}(T)$ gemessen (Fig. 30).Im Bereich kleiner $n_{Na}(T)$, d.h. optisch dünner Schicht, ist $R_{21}(n_{Na},\Delta\tilde{\nu}_L=\Delta\tilde{\nu}_o)$ konstant = $R^o_{21}(\Delta\tilde{\nu}_o)$; bei höherem $n_{Na}(T)$ nimmt $R_{21}(n_{Na},\Delta\tilde{\nu}_o)$ ab, da D_2-Strahlung stärker reabsorbiert wird als D_1-Strahlung. Wegen der $\Delta\tilde{\nu}_L$-Unabhängigkeit der Reabsorption ergibt sich dann für $R^o_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ aus $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ bei der Arbeitstemperatur

$$R^o_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L) = \frac{R^o_{21}(\Delta\tilde{\nu}_o)}{R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_o)}\ R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L) \qquad (4.50)$$

Da Reabsorption über die Linienbreite auch noch von der Störteilchendichte abhängt, wurde $R_{21}(T)$-Messungen bei verschiedenen Ar-Dichten durchgeführt (Fig. 30).

4.5.3. Zirkularpolarisation der D_1-Fluoreszenz

Die Orientierung der $Na^2P_{1/2}$-Atome erfolgte durch Absorption von zirkularpolarisiertem Licht.Zur Untersuchung der Stoß-Desorientierung wurde die D_1-Fluoreszenz mit einem Zirkularanalysator unter $180^o-\alpha$, $\alpha=15^o$, zur Anregungsrichtung gemessen (Fig.27).

Der Zirkularpolarisator (ZP) bestand aus einer Kombination

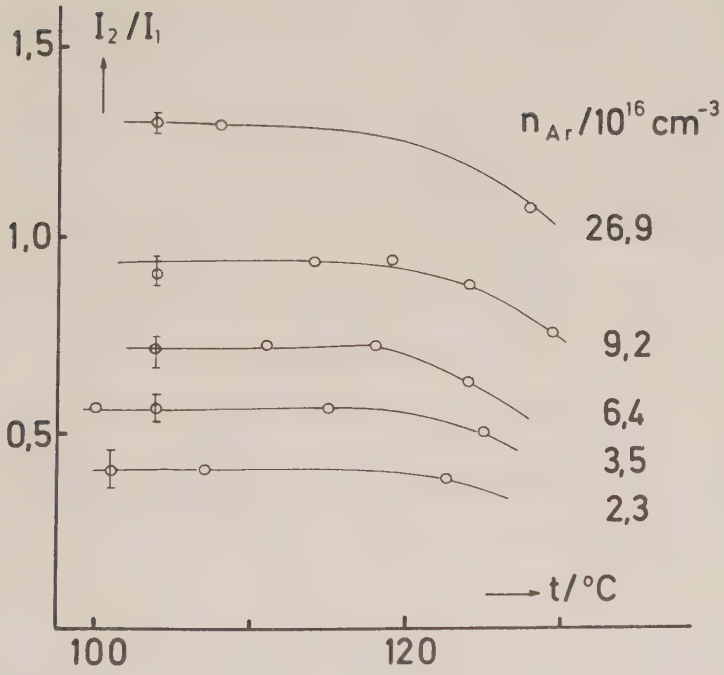

Fig. 30. D_2/D_1-Fluoreszenzverhältnis von Natrium als Funktion der Zellentemperatur bei verschiedenen Ar-Anzahldichten.

π-Anregung im roten D_1-Flügel: $\Delta\tilde{\nu}_L = 0.95\ cm^{-1}$;
$I_L = 30\ mW/mm^2$.

von Glan-Thomson-Prisma /G27/ und $\lambda/4$-Plättchen aus Quarz /G29/ mit 10 mm Durchmesser.Als Zirkularanalysator (ZA) wurde aus Intensitätsgründen eine entsprechende Kombination aus glasgefaßten Folien /G28/,/G30/ mit 50 mm Durchmesser verwendet.Mit dem justierten ZA wurde der zirkulare Polarisationsgrad von Licht einer Na-Spektrallampe nach Durchgang durch den ZP zu 0.95 gemessen.

Bei der Auswertung des zirkularen Polarisationsgrades P^{σ} aus den Intensitätsmessungen I_r, I_l mit dem Detektor für rechts- und linkszirkulares Licht ist zu berücksichtigen, daß diese Intensitäten nicht ohne weiteres als σ_+- bzw. σ_--Intensitäten angesehen werden können.Denn bei Beobachtung unter $\alpha=15^{o}$ tritt das σ_+- bzw. σ_--Licht bereits elliptisch polarisiert auf.Dies kann jedoch mittels folgender Beziehung korrigiert werden /49/

$$P^{\sigma} := \frac{I_{\sigma+} - I_{\sigma-}}{I_{\sigma+} + I_{\sigma-}} = \frac{I_r - I_l}{I_r + I_l} \cdot \frac{2\cos\alpha}{1+\cos^2\alpha+\sin^2\alpha} \qquad (4.51)$$

Schließlich wurde ähnlich wie bei den Messungen in 3.5.2. sichergestellt, bis zu welcher maximalen Na-Dichte (Zellentemperatur) die Emission aus optisch dünner Schicht erfolgt. Dazu wurde der zirkulare Polarisationsgrad der D_1-CIF als Funktion der Zellentemperatur t gemessen.Aufgrund des in Fig.31 dargestellten Ergebnisses wurden dann die eigentlichen Messungen der $^2P_{1/2}$-Desorientierung bei t=122 ^{o}C durchgeführt.

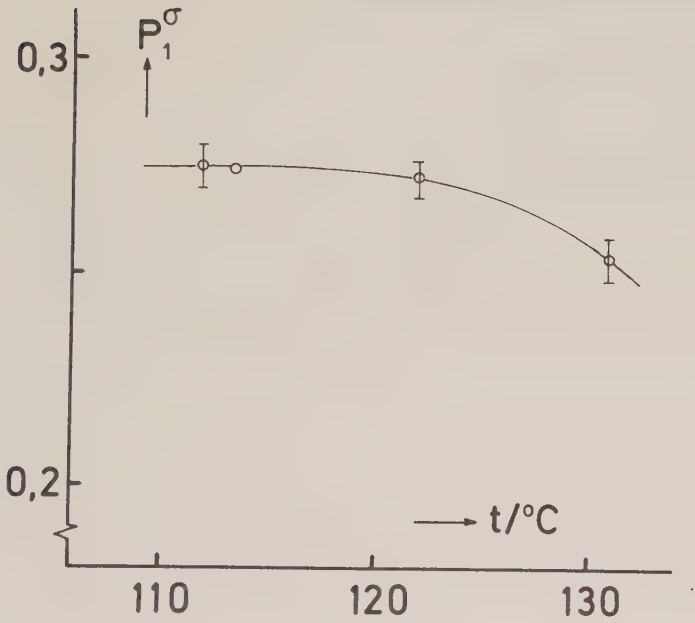

Fig. 31. Zirkularer Polarisationgrad der Na D_1-Fluoreszenz als Funktion der Zellentemperatur.

σ-Anregung im roten D_1-Flügel: $\Delta\tilde{\nu}_L$ = 0.95 cm^{-1};

I_L = 30 mW/mm^2; n_{Ar} = $9.2*10^{16}$ cm^{-3}.

4.6. Meßergebnisse und Vergleich mit der Theorie

4.6.1.FS-Überführung

Fluoreszenzfunktionen

Fig.32 stellt die Meßresultate des Fluoreszenzverhältnisses $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,n):=I_{D2}(\Delta\tilde{\nu}_L,n)/I_{D1}(\Delta\tilde{\nu}_L,n)$ als Funktion der Resonanzabweichung $\Delta\tilde{\nu}_L$ im Bereich 1-30 cm^{-1} des roten D_1 -Flügels bei verschiedenen Ar-Teilchendichten n dar.

Das Anwachsen von $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L=const,n)$ demonstriert die mit n zunehmende $^2P_{3/2}$-Besetzung durch Folgestöße $^2P_{1/2}\rightarrow{}^2P_{3/2}$ nach der Anregung während der spontanen Lebensdauer.Die Zunahme ist dadurch bedingt, daß in dem untersuchten n-Bereich, entsprechend Stoßzahlen $x=\gamma^{(o)}_{1/23/2}/\Gamma$ der Größenordnung eins, noch kein Ratengleichgewicht für den Prozess $^2P_{1/2}\rightarrow{}^2P_{3/2}$ besteht.Dem entspricht, daß die gemessenen R_{21}-Werte allgemein unter dem Gleichgewichtswert $R_{21}(\infty)=1.88$ liegen.

Die Zunahme von $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,n=const)$ mit wachsendem $\Delta\tilde{\nu}_L$ist bestimmt durch diejenige des Anregungsverhältnisses $s_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)/s_{1/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ der beiden Zustände und der Übergangswahrscheinlichkeit $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$.Die Bestimmung der letzteren erfordert die Auswertung der Fluoreszenzfunktionen $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,0)$ für den Grenzfall vernachlässigbarer Folgestoßzahlen ($x \ll 1$) aus den gemessenen $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,n)$.

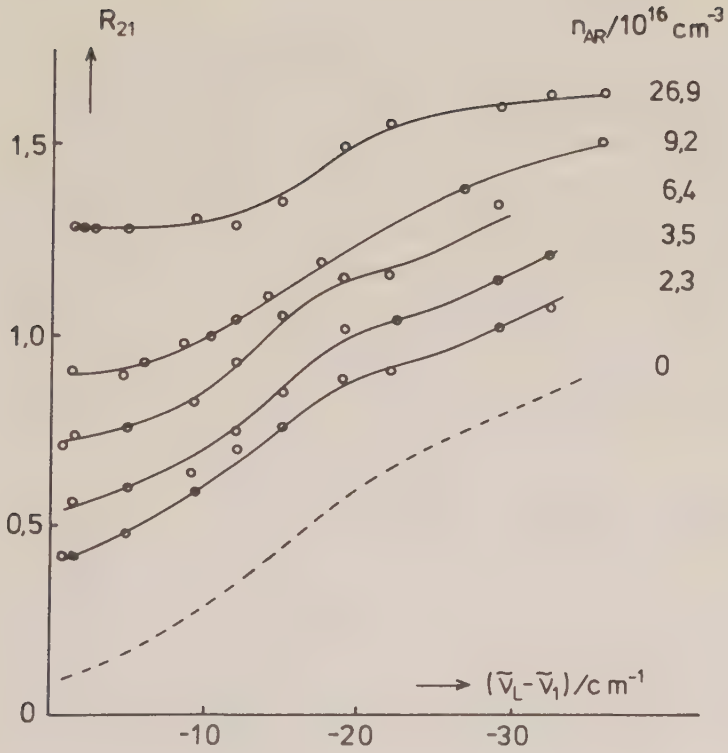

Fig. 32. D_2/D_1-Fluoreszenzverhältnis von Natrium als Funktion der Anregungsfrequenz im roten D_1-Flügel bei verschiedenen Ar-Anzahldichten.

Anregung: π-Licht; I_L = 30 mW/mm^2; Beobachtung: 180° zur Anregungsrichtung.

Test des Ratenansatzes Gl.(4.2)

Dazu wird die in n nichtlineare Funktion $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,n)$, Gl. (4.7), durch die Substitution $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,n) \quad F_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,n)$ gemäß Gl.(4.26) linearisiert.Fig.32 zeigt, daß im Bereich $x<1$ der lineare Zusammenhang für alle $\Delta\tilde{\nu}_L$ experimentell sehr gut bestätigt wird.Dies bedeutet, daß der Ratenansatz Gl.(4.2) für Direktprozesse und Folgeprozesse, der zu Gl.(4.7) führt, in diesem Bereich eine gute Näherung darstellt.Die gesuchte Fluoreszenzfunktion $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,0)$ ergibt sich aus den Steigungen bzw. Ordinatenabschnitten von $F_{21}(x)$ bei verschiedenen $\Delta\tilde{\nu}_L$ und ist in Fig.33 dargestellt.

Totale Querschnitte

Die in Gl.(4.26) auftretenden totalen Überführungsquerschnitte wurden durch eine gesonderte Messung der Fluoreszenzverhältnisse R_{12} und R_{21} bei Anregung in den Lorentzflügeln von D_2 bzw D_1 bestimmt.Messungen bei $\tilde{\nu}_2-\tilde{\nu}_L = \tilde{\nu}_1-\tilde{\nu}_L = 0.95\ cm^{-1}$ und $n_{Ar} = 2.7*10^{17}\ cm^{-3}$ lieferten mittels Gln. (4.27),(4.28) die in der Tabelle angegebenen Werte: Diese liegen systematisch über denen der Literatur.

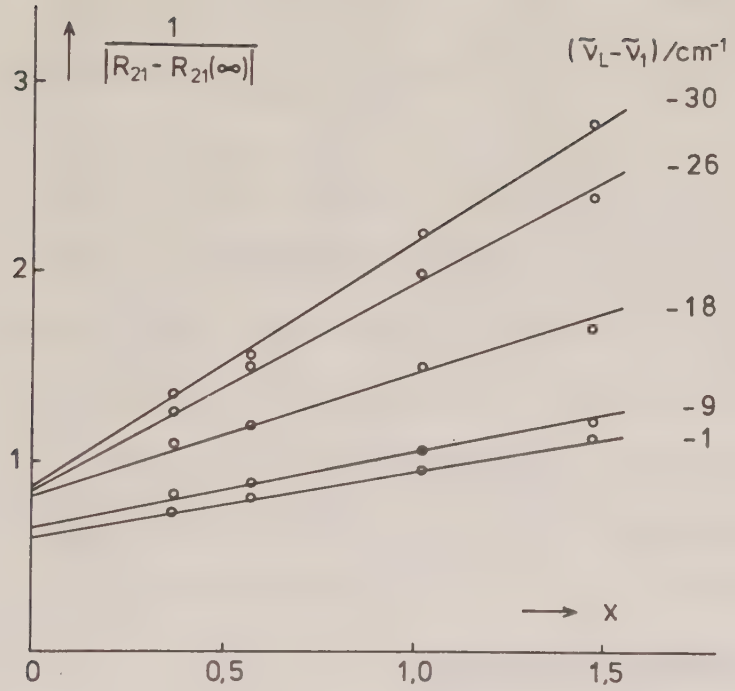

Fig. 33. Linearisierte Darstellung des D_2/D_1-Fluorezenzverhältnisses als Funktion der reduzierten Ar-Anzahldichte $x := n\,\bar{v}\,\sigma^{(o)}_{1/23/2}/\Gamma$ gemäß Gl.(4.28) bei Anregung im roten D_1-Flügel.

$\sigma_{1/23/2}/Å^2$	$\sigma_{3/21/2}/Å^2$	Referenz,Kommentar
100 ±20	60 ±12	Lochte-Holtgreven /47/ T=443 K
109.9	55.9	Krause et al. /48/ T=379 K
133 ±8	74 ±5	diese Arbeit T=400 K

Dazu ist zu sagen, daß in den älteren Arbeiten die Fluoreszenzanregung breitbandig (2-3 Dopplerbreiten $\Delta\tilde{\nu}_D$) symmetrisch zur jeweiligen Übergangsfrequenz erfolgte, in dieser Arbeit jedoch schmalbandig (0.01 $\Delta\tilde{\nu}_D$) etwa 20 $\Delta\tilde{\nu}_D$ von den Resonanzen entfernt.Es ist möglich, daß bei diesen Resonanzabweichungen trotz Anregung in den Lorentzflügeln, also im Impact-Bereich, kleine Stoßparameter bevozugt werden, verbunden mit einer Erhöhung des integrierten Stoßquerschnitts.Bemerkenswerterweise stimmt jedoch der Wert des Verhältnisses $\sigma^{(o)}_{1/23/2}/\sigma^{(o)}_{3/21/2} = 1.80 \pm 0.18$ im Rahmen der Fehlertoleranzen mit dem theoretischen Wert 1.87 überein.

Wahrscheinlichkeitsfunktion

Mit der Fluoreszenzfunktion $R_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L,0)$ aus obigem Verfahren, der Anregungsfunktion $s_{21}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ aus der Methode in 4.4.1., sowie dem Wahrscheinlichkeitsverhältnis $\alpha=1$ erhält man schließlich mittels Gl.(4.6) die in Fig.34 dargestellte Wahrscheinlichkeitsfunktion $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ für den Übergang $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$.

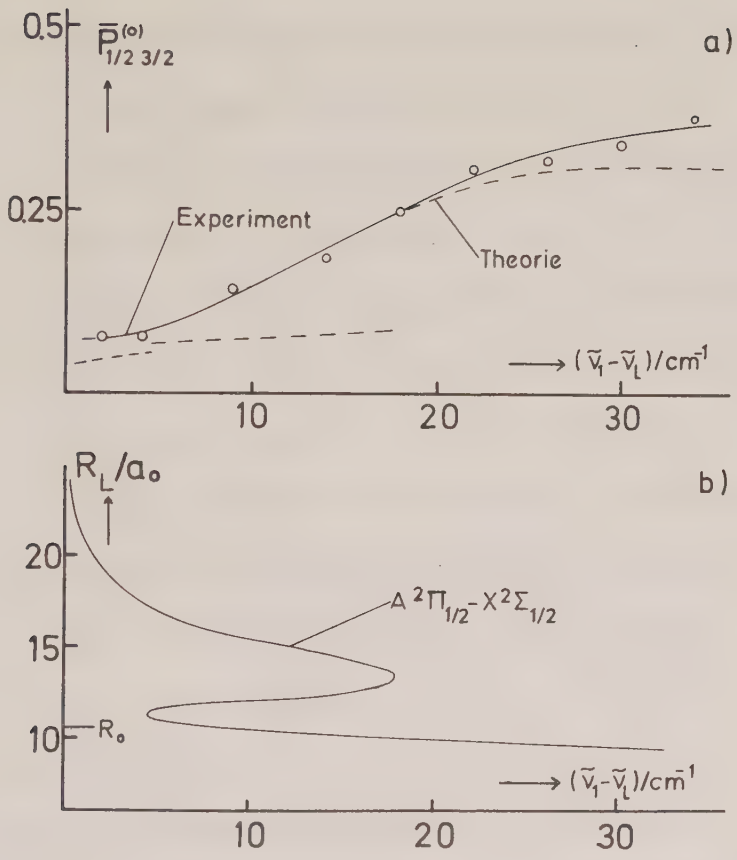

Fig. 34. Wahrscheinlichkeit für Na $3(^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2})$-Übergänge im Einzelstoß mit Ar 3^1S_o nach $P_{1/2}$-Anregung durch stoßinduzierte Absorption ω_L im roten D_1-Flügel.

a) (-o-o-) gemessene und (----) berechnete Wahrscheinlichkeit (adiabatische Theorie /8/, modifiziert für Halbstöße (vgl. 4.3.3.)) als Funktion der Absorptionsfrequenz.

b) Kernabstand R_L als Funktion der Absorptionsfrequenz ω_L aus der Potentialdifferenz $\Delta V(A^2\Pi_{1/2}-X^2\Sigma_{1/2})$.

Die in 4.3.2. abgeschätzte kritische Absorptionsfrequenz 5 cm^{-1} im roten D_1-Flügel liegt innerhalb des Bereichs 1-30 cm^{-1}, in dem eine starke Zunahme von $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ nämlich von 0.1 auf 0.4, beobachtet wird.Der theoretisch vorhergesagte Effekt wird also durch das Experiment qualitativ bestätigt.Der nichtverschwindende, $\Delta\tilde{\nu}_L$-unabhängige Wahrscheinlichkeitswert 0.10 im Lorentzbereich ($\Delta\tilde{\nu}_L \leq$ 5 cm^{-1}) ist als Beitrag der Stoßparameter $b_{min} \leq b \leq R_o$ bei breitbandiger Anregung auf der R-Skala zu interpretieren.Darüberhinaus besteht im Vergleich zur Theorie grobe Übereinstimmung hinsichtlich des Anstiegs von $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ nämlich ≈ 0.3 in dem untersuchten spektralen Intervall. Dies demonstriert die Konsistenz der gesamten Methode, d.h. von Meßverfahren, Stoßtheorie und Potentialdaten. Insbesondere spricht die Übereistimmung bzgl. des Absolutlevels oberhalb 18 cm^{-1} für die Richtigkeit der Annahme α=1 (Gl.(4.33)), sowie des Zahlenfaktors 1/2 in Gl.(4.26) bei der Berechnung von $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$.Wäre α=1/2, wie bei Ganzstößen, und der Zahlenfaktor 1, so wäre der Wahrscheinlichkeitswert bei 30 cm^{-1} gegenüber dem Experiment um etwa den Faktor 4 zu groß.

Quantitative Übereinstimmung bzgl. des detaillierten $\bar{P}^{(o)}_{1/23/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$-Verlaufs ist aufgrund der zahlreichen, in der Theorie gemachten Näherungen nicht zu erwarten.Diejenigen Näherungen, die der gesamten Methode gemeinsam sind, werden in 4.7. im einzelnen diskutiert.

4.6.2. $^2P_{1/2}$-Disalignment

Der totale Disalignmentquerschnitt $\sigma^{(2)}_{3/2}$ wurde aus dem linearen Polarisationsgrad P^{π}_2 der bei 0.95 cm^{-1} angeregten D_2-Fluoreszenz erhalten.Bei abgekoppeltem Kernspin (Magnetfeld 140 Oe) ergibt sich mittels Gln.(4.41),(4.39) unter Verwendung der von mir gemessenen Besetzungstransfer-Querschnitte in Tabelle 4.6.1. der Wert $\sigma^{(2)}_{3/2}$ =(280 $\pm$ 30) $Å^2$; dieser Wert stimmt gut mit dem Wert (308 $\pm$ 31) $Å^2$ von /16/ überein.

Fig.35 zeigt die Wahrscheinlichkeitsfunktion $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$, die sich aus dem im Anregungsbereich zwischen den D-Linien gemessenen Polarisationsverlauf $P^{\pi}_2(\Delta\tilde{\nu}_L)$ (vgl. Fig.19) mittels Gln.(4.35), (4.36) ergibt.In diesem Bereich ist ein kontinuierlicher Anstieg von 0.25 auf ≈1 zu beobachten, dem ein kleines Vorläufermaximum überlagert ist; letzteres entspricht dem Dip in $P^{\pi}_2(\Delta\tilde{\nu}_L)$.

In den Bereich des Anstiegs fallen die kritischen Absorptionsfrequenzen für Π-Σ-Dephasierung, $\tilde{\nu}_2-\tilde{\nu}_d$ = 5.0 cm^{-1} und adiabatische Rotation, $\tilde{\nu}_2-\tilde{\nu}_r$ = 13 cm^{-1}.Der theoretisch vorausgesagte Effekt wird also experimentell qualitativ bestätigt+).Im Vergleich zum theoretischen $\bar{P}^{(2)}_{3/2}$-Ver-

+)Es sei bemerkt, daß der Einfluß des $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ Besetzungstransfers auf den D_2-Polarisationsgrad bei Annäherung an die D_1-Linie durch das Auswertverfahren in 4.4.2. eliminiert wird.

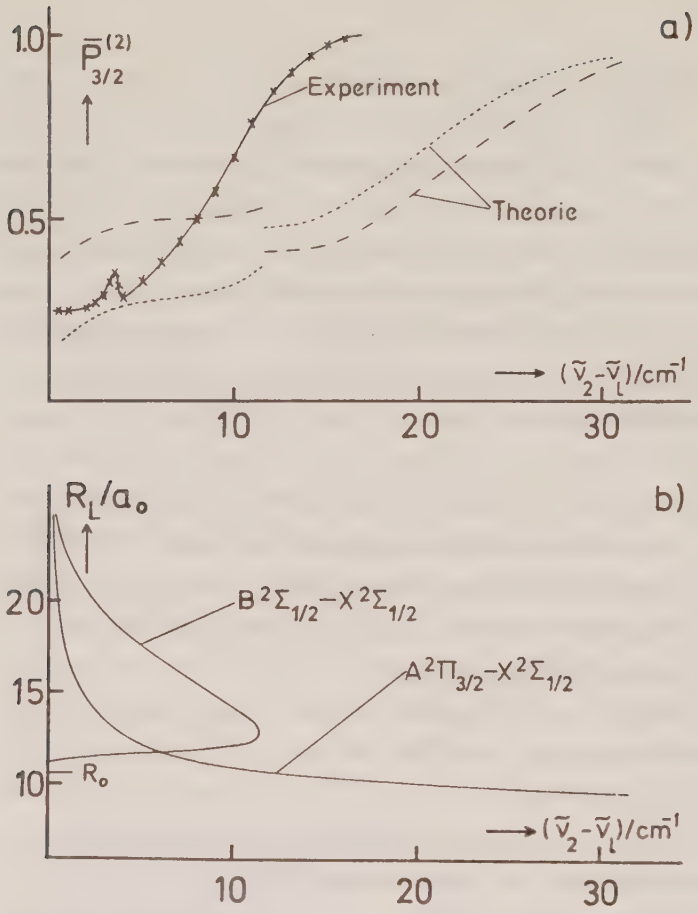

Fig. 35. Wahrscheinlichkeit für Na $3^2P_{3/2}$-Disalignment im Einzelstoß mit Ar 3^1S_o nach $^2P_{3/2}$-Anregung durch stoßinduzierte Absorption ω_L im roten D_2-Flügel.

a) -x-x- Experiment (vgl. Fig.19 und 4.4.2.)

– – –
..... } Theorie für Kopplungsfall { (b), (c) (vgl. 4.3.4.)

b) Kernabstand R_L als Funktion der Absorptionsfrequenz aus den Potentialdifferenzen $\Delta V(A^2\Pi_{3/2}-X^2\Sigma_{1/2})$ und $\Delta V(B^2\Sigma_{1/2}-X^2\Sigma_{1/2})$

lauf besteht Übereinstimmung hinsichtlich der relativen Zunahme und der Absolutgröße von $\bar{P}^{(2)}_{3/2}$.Dagegen verteilt sich der Anstieg in der Rechnung über ein etwa doppelt so großes $\Delta\tilde{\nu}_L$-Intervall.Außerdem fehlt der Vorläufer-Peak.

Das zu große Anstiegsintervall ist im Lichte der verwendeten Potentialdaten von Düren /37/, insbesondere der $A^2\Pi_{3/2}$- und $B^2\Sigma_{1/2}$-Verläufe zu betrachten.In dem relevanten Bereich großer Kernabstände $R > 10a_o$ ist mit erheblichen Unsicherheiten zu rechnen .Hier liegt das Minimum des $B^2\Sigma_{1/2}$-Potentials bei $r_B^{min}=11.9a_o$ mit einer Tiefe $\varepsilon_B=31cm^{-1}$ und der Kreuzungspunkt mit dem $A^2\Pi_{3/2}$-Potential bei $r_{AB}^c=11.6a_o$.Demgegenüber ergeben die Rechnungen von Baylis /38/ ein sehr viel flacheres $B^2\Sigma_{1/2}$-Potentialminimum mit $\varepsilon_B=10.5cm^{-1}$ bei $r_B^{min}=14.8a_o$ und einem AB-Kreuzungspunkt bei $r_{AB}^c=13.75a_o$.Mit dem $X^2\Sigma_{1/2}$-Potential reduziert sich dann das zugeordnete Extremum des $B^2\Sigma_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$ Differenzpotentials auf $\Delta\tilde{\nu}_G= 5.4cm^{-1}$.Dadurch verschiebt sich die Sprungstelle der theoretischen $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$-Funktion um den Faktor 2 hin zu kleineren Resonanzabweichungen, und das $\Delta\tilde{\nu}_L$-Intervall des anschließenden Anstiegs wird aufgrund des $A^2\Pi_{3/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$-Verlaufs gestaucht.Dies führt zu einer wesentlichen Verbesserung der Übereistimmung mit dem Experiment.

Das Fehlen des Vorläuferpeaks im theoretischen $\bar{P}^{(2)}_{3/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$-Verlauf ist dadurch zu erklären, daß im Ansatz Gl.(4.21) als Anfangszustand $\Psi(t=t_L)$ implizit ein ungestörter atomarer

Überlagerungszustand angenommen wird.Tatsächlich wird jedoch ein molekularer Zustand $\sum_{M_J} a_J(R_L)|JM_J\rangle$ mit R_L-abhängigen Mischamplituden präpariert.Die Mischung wird maximal am Kreuzungspunkt der AΠ-BΣ-Potentiale und führt dort zu einer zusätzlichen Depolarisation.Für diese Interpretation spricht die experimentelle Position des Peaks bei $\Delta\tilde{\nu}_L = 3.5\ cm^{-1}$ zwischen den Positionen 2.3 cm^{-1} und 6.0 cm^{-1} der Kreuzungspunkte, die sich aus den Potentialdaten von Baylis /38/ bzw. Düren /37/ ergeben.

4.6.3. $^2P_{1/2}$-Desorientierung

Der totale Querschnitt $\sigma^{(1)}_{1/2}$ wurde aus dem zirkularen Polarisationsgrad P^{σ}_1 der D_1-Fluoreszenz bei Anregung an der Stelle 0.95 cm^{-1} im roten D_1-Flügel erhalten (vgl. Fig.36).Die Auswertung erfolgte mittels Gln.(4.46),(4.48),(4.49) unter Verwendung der von mir gemessenen Querschnitte für Besetzungstransfer in Tabelle 4.6.1. und Querschnitts für Orientierungstransfer $\sigma^{(1)}_{1/23/2}$= 94.5 $Å^2$ aus der Literatur /48/.Es ergibt sich $\sigma^{(1)}_{1/2}$= (69 $\pm$ 7) $Å^2$ in guter Übereinstimmung mit dem Literaturwert (57 $\pm$ 8)$Å^2$ /48/.

Fig.37 zeigt die Wahrscheinlichkeitsfunktion $\bar{P}^{(1)}_{1/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ im Anregungsbereich $1 \leq \Delta\tilde{\nu}_L/cm^{-1} \leq 40$ des roten D_1-Flügels, die aus dem gemessenen Polarisationsverlauf $P^{\sigma}_1(\Delta\tilde{\nu}_L)$ mittels Gln.(4.46),(4.47) ausgewertet wurde.Die Wahrscheinlichkeit wächst von Null bei der D_1-Resonanz auf etwa 0.3 bei 30 cm^{-1}.Dieser Befund stimmt mit Abschätzungen der

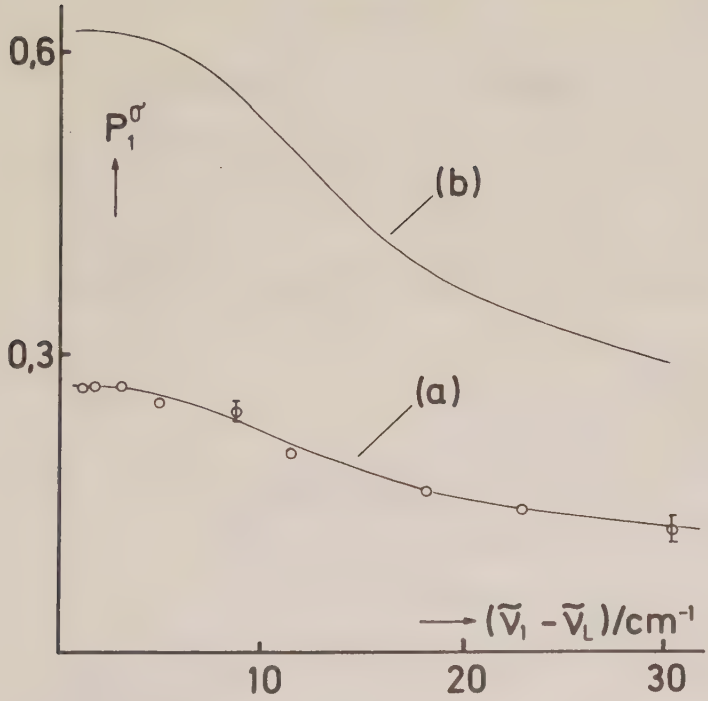

Fig. 36. Zirkularer Polarisationsgrad der Na D_1-Fluoreszenz bei Anregung im roten D_1-Flügel.

a) Anregung: σ-Licht; Beobachtung: 180° zur Anregungsrichtung; I_L = 30 mW/mm^2; $n_{Ar} = 9.6 * 10^{16}$ cm^{-3}.

b) Korrektur auf Kernspin Null (vgl. 4.4.2.).

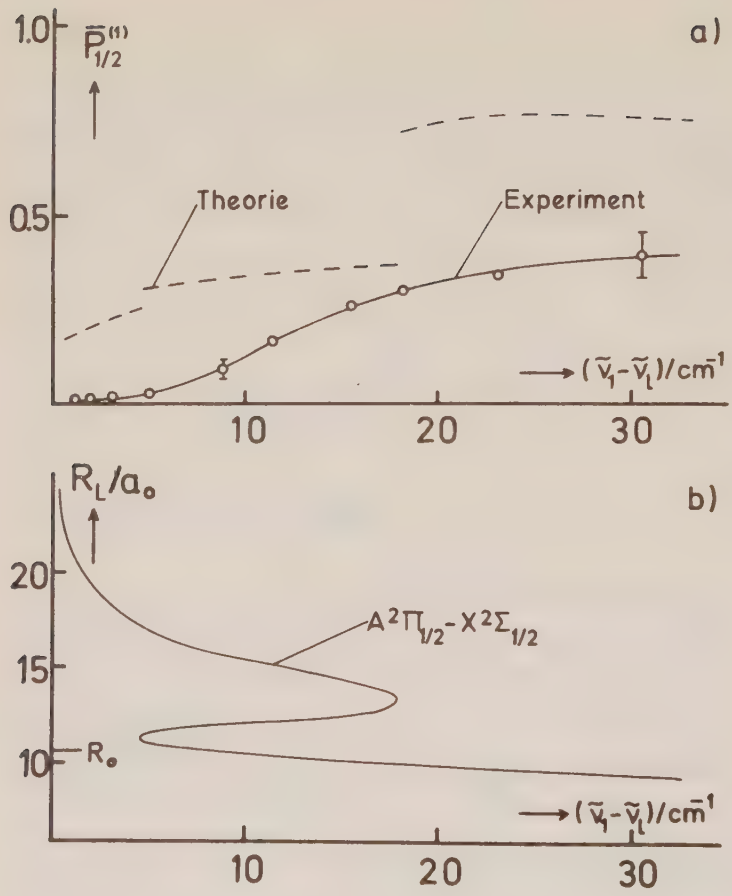

Fig. 37. Wahrscheinlichkeit für Na $3^2P_{1/2}$-Desorientierung im Einzelstoß mit Ar 3^1S_o nach $^2P_{1/2}$-Anregung durch stoßinduzierte Absorption ω_L im roten D_1-Flügel.

a) (-o-o-) gemessene und (-----) berechnete Wahrscheinlichkeit (adiabatische Theorie /8/, modifiziert für Halbstöße (vgl. 4.3.3.)) als Funktion der Absorptionsfrequenz.

b) Kernabstand R_L als Funktion der Absorptionsfrequenz ω_L aus der Potentialdifferenz $\Delta V(A^2\Pi_{1/2}-X^2\Sigma_{1/2})$.

kritischen Anregungsfrequenzen für die beteiligten Relaxationsmechanismen, nämlich L-S-Entkopplung $\Delta\tilde{\nu}_{fs} = 5cm^{-1}$ und L-R-Kopplung $\Delta\tilde{\nu}_o = 8cm^{-1}$, überein.Der numerisch nach Gln.(4.22)-(4.24) berechnete $\bar{P}^{(1)}_{1/2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$-Verlauf reproduziert qualitativ den gemessenen, wobei man wieder von den Unstetigkeiten abzusehen hat.Das Absolutlevel ist jedoch allgemein zu hoch.Im Anregungsbereich $\Delta\tilde{\nu}_L \geq \Delta\tilde{\nu}_{max} = 18cm^{-1}$ oberhalb des $A^2\Pi_{1/2}$-$X^2\Sigma_{1/2}$-Potentialmaximums kann dies folgendermaßen verstanden werden: Bei der Herleitung von Gln.(4.22)-(4.24) wird Präparation des ungestörten atomaren $^2P_{1/2}$-Zustandes vor dem Stoß angenommen (Gl.(4.21)), sodaß an der Relaxation Π- und Σ-Zustände gleichermaßen beteiligt sind.Tatsächlich dominieren jedoch nach selektiver Präparation von $^2\Pi_{1/2}$-Zuständen im Bereich $R_L < R_o$ Übergänge nach $^2\Pi_{3/2}$, während Π-Σ-Mischung vernachlässigbar ist.Gegenüber Ganzstößen wird dadurch im Experiment die Depolarisationsrate zusätzlich vermindert.Das zu hohe Absolutlevel im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L \leq \Delta\tilde{\nu}_{max}$, wo Π-Σ-Mischung nicht vernachlässigbar ist, muß jedoch andere Gründe haben,die bisher nicht bekannt sind.

4.7 Ausblick

Eine Voraussetzung für unsere Methode ist die Gültigkeit der quasistatischen Theorie der Linienverbreiterung, mit dem Gültigkeitsbereich oberhalb einer Grenzfrequenz von ca. 30 cm^{-1}.Bei unseren Messungen im Bereich 1 - 40 cm^{-1} ist diese Voraussetzung also nur teilweise erfüllt.Dies hat zur Folge, daß ein relativ breites Kernabstandsintervall an der Anregung beteiligt ist.Für einen quantitativen Vergleich mit der Theorie ist daher Anregung weit oberhalb 30 cm^{-1} äußerst wünschenswert.Wegen der geringen Absorption und entsprechend geringen Fluoreszenzsignalen muß man dann jedoch mit empfindlicheren Nachweismethoden, wie z.B. Photonenzählung, arbeiten.

Eine weitere Näherung besteht in der Annahme geradliniger Trajektorien, die nur bei hinreichend großen Stoßparametern erfüllt ist.Realistische Trajektorien bei kleinen Stoßparametern ergeben eine Änderung der Phasenstörung und des Rotationswinkels.Bei Weitflügelanregung im Experiment sind daher zusätztliche Effekte speziell bei der Depolarisation zu erwarten.

Schließlich werden nichtadiabatische Übergänge bei Potentialkreuzungen in unserer theoretischen Behandlung vernachlässigt.Tatsächlich finden solche Übergänge aber besonders bei Anregung an der Grenze der Wirkungssphäre R_o statt.Zu ihrer genaueren Untersuchung ist unsere bisherige Methode

zu unempfindlich, weil über ein zu großes Stoßparameterintervall gemittelt wird.Die Empfindlichkeit kann jedoch wesentlich verbessert werden, wenn man kurz vor der Kreuzungsstelle beim Kernabstand R_1 mit einem Pumplaser anregt und kurz dahinter bei R_2 den Stoßübergang über die Absorption eines Analysenlasers nachweist.

5. Zusammenfassung

Gegenstand der Arbeit ist die Umverteilung polarisierter, monochromatischer Strahlung $\tilde{\nu}_L$ bei Streuung in der Nähe eines atomaren Resonanzübergangs mit Multiplettstruktur. Dabei bewirkt die intraatomare Spin-Bahn- sowie Kernspin--Hüllendrehimpuls-Wechselwirkung räumliche Umverteilung der Streustrahlung (Depolarisation der Rayleigh-Komponente), die Stoßwechselwirkung außerdem eine spektrale Umverteilung (stoßinduzierte Fluoreszenz CIF) durch Übergänge zwischen den angeregten Fein- und Hyperfein-Niveaus.Der Akzent der Arbeit lag auf der Untersuchung der Stoßeffekte bei kleinen Strahlungsintensitäten (d.h. Vernachlässigbarkeit von Mehrphotonen-Prozessen) mit dem Ziel eines experimentellen Tests verschiedener Voraussagen existierender, ausgearbeiteter Theorien der Redistribution von Resonanzstrahlung (TR) und der Stoßrelaxation von Resonanzniveaus (TCR). Die Untersuchungen wurden am Na-Übergang $3^2S \rightarrow 3^2P$ in Wechselwirkung mit Ar 3^1S bei thermischen Energien ($T \approx 400$ K) durchgeführt, da für dieses System Stoßquerschnitte und Wechselwirkungspotentiale vorliegen, die einen quantitativen Vergleich mit den Theorien ermöglichen.

Dazu wurden Messungen von Intensität und Polarisationsgrad der 3 Streukomponenten RS, D_1-CIF und D_2-CIF bei Variation der Resonanzabweichung $\Delta\tilde{\nu}_L$ der anregenden Strahlung bis maximal 5o cm^{-1} durchgeführt. Die Streuung erfolgte an Na-Dampf/Argon-Gemischen in einer Zelle

($n_{Na} < 1o^{11} cm^{-3}, n_{Ar} < 3*1o^{17} cm^{-3}$) mit einem verstimmbaren Einmoden-Dauerstrich-Farbstofflaser. Für die bequeme Variation von n_{Ar} und Messungen des zirkularen Polarisationsgrades der D_1-CIF in Rückwärtsrichtung wurde eine streulichtarme Stahlzelle geeigneter Geometrie entwickelt. Die Registrierung der Streustrahlung erfolgte nach spektraler Zerlegung durch ein FP-Interferometer mittels Lock-In-Technik.Zum Test der Theorie wurden außerdem numerische Rechnungen durchgeführt.Es wurden berechnet 1) auf der Grundlage der TR polarisationsabhängige Anregungsfunktionen der Streukomponenten sowie 2) auf der Grundlage der TCR Wahrscheinlichkeitsfunktionen $\bar{P}^{(k)}_J(\Delta\tilde{\nu}_L)$ für Stoßrelaxation der Multipolkomponenten in den Drehimpulszuständen J=1/2,3/2 des Na-Resonanzniveaus.Die Ergebnisse der Untersuchungen lassen sich folgendermaßen zusammenfassen.

1) Redistribution der Resonanzstrahlung.Der lineare Polarisationsgrad $P^{\pi}_{RS}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ der stoßfreien RS durchläuft im Bereich $\Delta\tilde{\nu}_L := \tilde{\nu}_L - \tilde{\nu}_2 < \Delta\tilde{\nu}_{HF}$ der HF-Aufspaltung der D_2-Resonanz ein Minimum.Dieses Verhalten ist, in Analogie zum Hanle-Effekt, bedingt durch die Präzesssionsbewegung des Kernspins während der Lebensdauer $\Delta\tilde{\nu}_L^{-1}$ des angeregten Elektrons und in quantitativer Übereinstimmung mit der TR. Tritt D_2-CIF hinzu ($n_{Ar} \neq 0$) so durchläuft die Polarisation der Gesamtstreustrahlung $P^{\pi}(\Delta\tilde{\nu}_L)$, integriert über die Dopplerbreite $\Delta\tilde{\nu}_D$ der D_2-Resonanz, bei $|\Delta\tilde{\nu}_L| \approx 2\Delta\tilde{\nu}_D$ zusätzlich Extrema, bedingt durch die unterschiedliche Polarisation der beiden Streukomponenten ($P^{\pi}_{RS} \approx 0.6$; $P^{\pi}_{D2} \approx 0.1$).

Die Polarisation $P^{\pi}_{D2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ der D_2-CIF ist im Lorentzbereich der D_2-Linie $\Delta\tilde{\nu}_L$-unabhängig, in Übereinstimmung mit der TR.Im quasistatischen Bereich erfolgt in Richtung auf die D_1-Linie zwischen 4 und 10 cm^{-1} ein monotoner Abfall auf Null, überlagert von einem Vorläufer-Minimum bei 3 cm^{-1}. Dieses Minimum fehlt im theoretischen $P^{\pi}_{D2}(\Delta\tilde{\nu}_L)$-Verlauf, und im Bereich des monotonen Abfalls sind die gemessenen Absolutwerte geringer als die berechneten.Die zusätzliche Depolarisation ist durch "starke" Stöße bedingt, die in der vorliegenden Version der TR unberücksichtigt bleiben: Die Position des Minimums ist mit der Kreuzungsstelle der molekularen $A^2\Pi_{3/2^-}$ und $B^2\Sigma_{1/2}$-Potentiale beim Kernabstand $R=12a_o$ im langreichweitigen Bereich der Na3P/Ar3S-Wechselwirkung korreliert, wo die zugehörigen M_J-Zustände bei der Anregung maximal mischen; bei $R\approx 10.6a_o$ koppelt der Bahndrehimpuls L=1 an die internukleare Achse und bewirkt durch Rotation während der Stoßes ebenfalls eine zusätzliche Depolarisation.

2) Relaxation der Resonanzniveaus durch Halbstöße.Durch Absorption von $\tilde{\nu}_L$ in den quasistatischen Flügeln der stoßverbreiterten Resonanzlinie erfolgt Präparation des angeregten Elektronenzustandes während eines "starken" Stoßes bei einem definierten Kernabstand $R(\tilde{\nu}_L)$ der Stoßpartner unter Selektion kleiner Stoßparamter $b \triangleq R_L$. Die reemittierte, umverteilte Fluoreszenz enthält daher detaillierte Information über die Stoßdynamik vom Zeitpunkt der Anregung bis zum Zeitpunkt wo das Stoßpaar auseinandergeflogen ist.

Ein Verfahren für die Bestimmung der $\Delta\tilde{\nu}_L$-abhängigen Wahrscheinlichkeit $\bar{P}_J^{(k)}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ für Stoßübergänge während dieses Zeitintervalls aus Messungen der Fluoreszenz-Anregungsfunktion und Kenntnis des Absorptionsprofils wird beschrieben. Das Verfahren wurde angewandt auf verschiedene Relaxationsprozesse der Na3^2P-Niveaus in Wechselwirkung mit Ar3^1S, nämlich 1) Feinstruktur-Transfer $^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$; 2) Disalignment von $^2P_{3/2}$; 3) Desorientierung von $^2P_{1/2}$. In Übereinstimmung mit Abschätzungen der Wirkungsradien und kritischen Absorptionsfrequenzen dieser Prozesse aus den vorliegenden Potentialdaten wird ein Anstieg der zugehörigen Relaxationswahrscheinlichkeiten $\bar{P}_J^{(k)}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ im Bereich 5-20 cm^{-1} auf der langwelligen Seite der D_2- bzw. D_1-Linie beobachtet. Die Berechnung der $\bar{P}_J^{(k)}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ erfolgte auf der Grundlage einer für "Ganzstöße" gültigen, adiabatischen Theorie, die für Halbstöße modifiziert wurde. Die berechneten Funktionen reproduzieren qualitativ die gemessenen Verläufe. Es zeigt sich, daß speziell $\bar{P}_{3/2}^{(2)}(\Delta\tilde{\nu}_L)$ empfindlich abhängt von der Tiefe des $B^2\Sigma_{1/2}$- Potentials und der Kreuzungsstelle mit dem $A^2\Pi_{3/2}$-Potential im langreichweitigen Bereich ($10 \triangleq R/a_o < 15$) der Wechselwirkung.

Literaturverzeichnis

/1/	W.G.Wrobel	IPP 1/160 (1970)
	E.K.Souw	Dissertation, Düsseldorf 1980
	H.Odenthal	Dissertation, Düsseldorf 1981
/2/	J.L.Carlsten, A.Szöke H.G.Raymer	Phys. Rev. A5, 1029 (1977)
/3/	F.Schuller W.Behmenburg	Z. Naturforsch. 30a, 442 (1975)
/4/	G.Nienhuis	Physica 93c, 393 (1978)
/5/	P.Thomann, K.Burnett, J.Cooper	Phys. Rev. Lett. 45, 1325 (1980)
/6/	E.P.Gordeyev,E.E.Nikitin M.Y.Ovchinnikova	Can. Journ. of Physics 47, 1819 (1969)
/7/	E.E.Nikitin	J. Chem. Phys. 43, 744 (1965)
/8/	E.L.Lewis,L.F.McNamara	Phys. Rev. A5, 2643 (1972)
/9/	W.E.Baylis	in "Progress in Atomic Spectroscopy B", W.Hanle, H.Kleinpoppen eds, Plenum 1979
/10/	M.Elbel	siehe Ref. /9/
/11/	C.Cohen-Tannoudji	Ann. Phys. 7, 423 (1962)

/12/ U.Fano — Rev. Mod. Phys. 29, 74 (1957)

/13/ A.Omont — Progr. Quantum Electronics 5, 65 (1977)

/14/ M.I.d´Yakonov — Sovjet-Phys. JETP 20 1484 (1965)

/15/ M.Rotenberg, R.Bivins, M.Metropolis, J.K.Wooten — The Technology Press, MIT Cambridge, Mass., 1959

/16/ M.Elbel, B.Kamke, W.B.Schneider — Physica, 77, 137 (1974)

/17/ A.Unsöld — Physik der Sternatmosphären Springer 1955

/18/ J.T.Jeffries — Spectral Line Formation Waltham, Mass.:Blaisdell Publishing Co. (1968)

/19/ D.G.Hummer, G.Rybicki — Ann. Rev. Astron. and Astrophys. 9, 237 (1971)

/20/ A.Omont, E.W.Smith, J.Cooper — Astrophys. J. 175, 185 (1972)

/21/ D.L.Huber — Phys. Rev. 178, 93 (1969)

/22/ G.Nienhuis, F.Schuller — Physica 92C 397, (1977) 409, (1977)

/23/ K.Burnett, J.Cooper — Phys. Rev. A22, 2027 (1980) A22, 2044 (1980)

K.Burnett, J.Cooper, R.J.Ballagh, E.W.Smith — Phys. Rev. A22, 2205 (1980)

/24/ G.Nienhuis — Physica 95C, 266 (1978)

/25/ V.Kroop, Ch.Kammler, W.Behmenburg — Z. Physik A286, 139 (1978)

/26/ V.Kroop, W.Behmenburg — Z. Physik A294, 299 (1980)

/27/ W.Behmenburg, V.Kroop — J. Phys. B14, 427 (1981)

/28/ W.Heitler — The Quantum Theory of Radiation, 3. ed. Oxford: Clarendon Press 1954

/29/ A.C.Tam, C.K.Au — Opt. Comm. 19, 265 (1976)

/30/ J. Apt, D.E.Pritchard — J. Phys. B12, 83 (1979)

/31/ G.Nienhuis — in "Spectral Line Shapes" 2, K.Burnett ed. de Guyter 1983

/32/ V.Kroop — Diplomarbeit, Düsseldorf.1976

/33/ Ch. Kammler — Staatsexamensarbeit, Düsseldorf 1977

/34/ A.Mitchell, M.Zeemanski — Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge University Press (1961)

/35/ P.Chall — Diplomarbeit, Düsseldorf.1978

/36/ M.J.Jongerius — Dissertation, Utrecht 1981

/37/ R.Düren, G.Moritz — J.Chem.Phys. 73, 5155 (1980)

/38/ W.E.Baylis — J.Chem.Phys. 51, 2665 (1969)

/39/ G.York, R.Sheps, A.Gallagher — J.Chem.Phys. 63, 1052 (1975)

/40/ W.D.Phillips, J.A.Serri, D.J.Ely, D.E.Pritchard, K.R.Way, J.L.Kinsey — Phys.Rev.Lett. 41, 937 (1978)

/41/ A.Gallagher — in "Topics in Applied Physics" vol 30, Springer 1979

/42/ V.Kroop, W.Behmenburg — Verhandl. DPG (VI) 17, 386 (1982)

/43/ W.Behmenburg, V.Kroop — in "Spectral Line Shapes" 2, K.Burnett ed. de Gruyter 1983

/44/ M.Elbel — Z.Physik 248, 375 (1971)

/45/ F.A.Franz, C.E.Soriamoorthi — Phys. Rev. A8, 2390 (1973)

/46/ L.Dressler — Diplomarbeit, Düsseldorf (1976)

/47/ W.Lochte-Holtgreven — Z.Physik 47, 362 (1928)

/48/ B.Niewitecka, T.Skalinski, L.Krause — Can. J. Phys. 52, 1956 (1975)

/49/ W.B.Schneider — Z.Phyik 248, 387 (1971)

/50/ N.Lwin, D.G.McCartan E.L.Lewis — J.Phys. B9, L161 (1976)

/51/ W.Lauge, J.Luther, B.Nottbeck, H.W.Schröder — Opt. Comm. 8, 157 (1973)

Anhang A

1.Dipol-Übergangsmatrixelemente

Im Fall der LS-Kopplung unterscheiden sich die Wellenfunktionen der FS-Multipletts lediglich durch einen Geometriefaktor, der die Kopplung des Bahndrehimpulses l an den Elektronenspin s berücksichtigt; das reduzierte Matrixelement $\langle L_e|\mu|L_i\rangle$ ist proportional zum Radialteil der Wellenfunktion und berücksichtigt die Gesamtstärke aller FS-Komponenten mit Werten J_i, J_e.
Nach /24/ gilt die Beziehung:

$$(1)\quad \langle J_e|\mu|J_i\rangle=(-1)^{S+l+L_e+L_i}\left[(2J_e+1)(2J_i+1)\right]^{\frac{1}{2}}\begin{Bmatrix} L_e & J_e & S \\ J_i & L_i & l \end{Bmatrix}\langle L_e|\mu|L_i\rangle$$

Speziell für das Na-Atom mit $J_i=1/2$; $J_e=1/2,3/2$ folgt aus (1):

$$\langle J_e|\mu|J_i\rangle = \begin{matrix} -\sqrt{\frac{3}{2}}\,(J_e=\frac{1}{2}) \\ \sqrt{\frac{4}{3}}\,(J_e=\frac{3}{2}) \end{matrix}\Bigg\}\langle L_e|\mu|L_i\rangle$$

Im Fall der HF-Struktur gilt eine ähnliche Relation, wenn man J, L und S durch F, J und I ersetzt:

$$(2)\quad \langle F_e|\mu|F_i\rangle=(-1)^{I+1+J_e+J_i}\left[(2F_e+1)(2F_i+1)\right]^{\frac{1}{2}}\begin{Bmatrix} J_e & F_e & I \\ F_i & J_i & 1 \end{Bmatrix}\langle J_e|\mu|J_i\rangle$$

2. q-Summation in Gln. (3.8)-(3.10)

Sind $\hat{\varepsilon}_L$, $\hat{\varepsilon}_S$ Anregungs- und Beobachtungsvektoren und k die betrachtete Multipolkomponente, so ist nach /24/

$$(3)\quad \sum_q \hat{\varepsilon}_L^* \cdot S_q^{k+} \cdot \hat{\varepsilon}_L \;\; \hat{\varepsilon}_S^* \cdot S_q^k \cdot \hat{\varepsilon}_S =$$

$$= \tfrac{1}{3}(\hat{\varepsilon}_L^* \cdot \hat{\varepsilon}_S)(\hat{\varepsilon}_S^* \cdot \hat{\varepsilon}_S) \qquad (k=o)$$

$$= \tfrac{1}{2}(\hat{\varepsilon}_L^* \cdot \hat{\varepsilon}_S)(\hat{\varepsilon}_L \cdot \hat{\varepsilon}_S^*) - \tfrac{1}{2}(\hat{\varepsilon}_L^* \cdot \hat{\varepsilon}_S^*)(\hat{\varepsilon}_L \cdot \hat{\varepsilon}_S) \qquad (k=1)$$

$$= \tfrac{1}{2}(\hat{\varepsilon}_L^* \cdot \hat{\varepsilon}_S)(\hat{\varepsilon}_L \cdot \hat{\varepsilon}_S^*) + \tfrac{1}{2}(\hat{\varepsilon}_L^* \cdot \hat{\varepsilon}_S^*)(\hat{\varepsilon}_L \cdot \hat{\varepsilon}_S) - \tfrac{1}{3}(\hat{\varepsilon}_L^* \cdot \hat{\varepsilon}_L)(\hat{\varepsilon}_S^* \cdot \hat{\varepsilon}_S) \qquad (k=2)$$

3. Relaxationsmatrix

Die Relaxationsmatrizen $(\tilde{\gamma}_k)$ (k=0,2) für die Zustände $Na3^2P_{1/2}$; $3^2P_{3/2}$ ist gegeben durch /24/:

$$(4) \qquad (\tilde{\gamma}_o) = \begin{pmatrix} \Gamma_e+\gamma_{1/23/2} & -\sqrt{2}\gamma_{3/21/2} \\ -1/\sqrt{2}\gamma_{1/23/2} & \Gamma_e+\gamma_{3/21/2} \end{pmatrix}$$

$$(\tilde{\gamma}_2) = \Gamma+\gamma_{3/21/2} + (\gamma_2)_{3/23/2}$$

$$\Gamma_e = \Gamma+\gamma_H$$

Stoßquerschnitte Na3P/Ar3S (in $10^{-16}cm^2$)

Phasenstörung	$\sigma_H = 299$	/50/
$^2P_{3/2}$-Disalignment	$\sigma_{3/23/2} = 272$	*
$^2P_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$	$\sigma_{1/23/2} = 133$	*
$^2P_{3/2} \rightarrow {}^2P_{1/2}$	$\sigma_{3/21/2} = 74$	*

spontane Zerfallsrate $\Gamma = 6.17*10^7\ s^{-1}$ /34/

Stoßraten $\gamma = n\bar{v}\sigma$

*: diese Arbeit

4. Liste der verwendeten 6j-Symbole /15/

Übergang $Na(3^2S_{1/2}(J_i=1/2) \leftrightarrow 3^2P(J_e=1/2,3/2))$

$$\left\{ \begin{matrix} J_e & F_e & I \\ F_i & J_i & 1 \end{matrix} \right\} \; ; \; I_{Na} = 3/2$$

$J_e = 1/2$:

F_i \ F_e →	1	2
1	$-\frac{1}{6}$	$\frac{1}{\sqrt{12}}$
2	$\frac{1}{\sqrt{12}}$	$-\frac{1}{\sqrt{21}}$

$J_e = 3/2$:

F_i \ F_e →	0	1	2	3
1	$-\frac{1}{\sqrt{12}}$	$\frac{1}{\sqrt{15}}$	$-\frac{1}{5}$	0
2	0	$\frac{1}{2}\frac{1}{\sqrt{30}}$	$-\frac{1}{5}\sqrt{\frac{2}{3}}$	$\frac{1}{\sqrt{21}}$

$$\left\{\begin{matrix} 1 & k & 1 \\ F_e & F_i & F_{e'} \end{matrix}\right\}$$

k=0

$F_e \rightarrow$ / $F_{e'} \downarrow$	$F_i=1$			$F_i=2$		
	0	1	2	1	2	3
0	$\frac{1}{\sqrt{3}}$	0	0	0	0	0
1	0	$-\frac{1}{3}$	0	$\frac{1}{3}$	0	0
2	0	0	$\frac{1}{\sqrt{15}}$	0	$-\frac{1}{\sqrt{15}}$	0
3	0	0	0	0	0	$\frac{1}{\sqrt{21}}$

k=2

$F_e \rightarrow$ / $F_{e'} \downarrow$	$F_i=1$			$F_i=2$		
	0	1	2	1	2	3
0	0	0	$\frac{1}{\sqrt{15}}$	0	0	0
1	0	$\frac{1}{6}$	$-\frac{1}{\sqrt{21}}$	$\frac{1}{30}$	$-\frac{1}{10}$	$\frac{1}{5}$
2	$\frac{1}{\sqrt{15}}$	$\frac{1}{\sqrt{21}}$	$\frac{3}{20}$	$-\frac{1}{10}$	$\frac{3}{20}$	$-\frac{1}{5}\sqrt{\frac{2}{3}}$
3	0	0	0	$\frac{1}{5}$	$-\frac{1}{5}\sqrt{\frac{2}{3}}$	$\frac{1}{5}\sqrt{\frac{2}{7}}$

Geräteliste

/G1/	Farbstofflaser	599	Coherent Radiation
/G2/	Ar^+-Laser	CR6	Coherent Radiation
/G3/	Interferenzfilter	600 nm peak	Zeiss
/G4/	Fabry-Perot-Etalon	600 nm peak d=0.15 mm	Zeiss
/G5/	Birefringendfilter ICA/ICA control box		Coherent Radiation
/G6/	Spektrumanalysator	FSR: 1.5 GHz	Coherent Radiation
/G7/	Oszillograph	555	Tektronix
/G8/	Thermopile	Typ 240	Coherent Radiation
/G9/	Zweikanalschreiber	Kompensogr.3	Siemens
/G10/	Quarz-Küvette	10*10*30 mm	Hellma
/G11/	Ar-Gas	6.0	Messer Griesheim
/G12/	Thermotron	TM 1371	Leybold Heraeus
/G13/	Heizschellen	150 W	Heräus-Wittmann
/G14/	Thermosistor	TP 24	Haake
/G15/	Heizkordel	300 W	Heräus-Wittmann
/G16/	Drehschieberpumpe	D4A	Leybold Heraeus
/G17/	Baratron	222	MKS Instruments
/G18/	Fabry-Perot-Interf.	(Druck)	B.Halle Nachf.
/G19/	Rohrfedermanometer	FA 160	Wallace & Tiermann
/G20/	Fabry-Perot-Interf.	(Piezo)	Burleigh Instruments
/G21/	Rampengenerator	RC 43	Burleigh Instruments
/G22/	Lock-In Verstärker	391 A	Ithaco
/G23/	Fotomultiplier	4840	RCA
/G24/	Digital-Voltmeter	3480 A	Hewlett Packard
/G25/	Lochstreifenstanzer	3489 A	Hewlett Packard
/G26/	Stromgenerator	6479 C	Hewlett Packard
/G27/	Glan-Thomson Prisma	Ø 10 mm	B.Halle Nachf.
/G28/	Polarisationsfolie	Ø 50 mm	Leybold Heräus
/G29/	$\lambda/4$-Platte	Ø 10 mm	B.Halle Nachf.
/G30/	$\lambda/4$-Platte	Ø 50 mm	B.Halle Nachf.

Dank

Die vorliegende Arbeit wurde am Physikalischen Institut I der Universität Düsseldorf angefertigt.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. W. Behmenburg, der mir das Thema stellte und mit beständigem Interesse sowie wertvollen Diskussionen und Anregungen den Fortgang der Arbeit gefördert hat.

Die vorliegende Arbeit wurde im Rahmen eines von der Deutschen Forschungsgemeinschaft geförderten Projekts durchgeführt, der ich hiermit für die Bereitstellung von Personal- und Sachmitteln danke.

Den Mitarbeitern der Physikalischen Institute I und II der Universität Düsseldorf, besonders den Herren H. Müller und Dr. J. Heinrich, bin ich für vielfältige Anregungen und Unterstützungen zu Dank verpflichtet.

Für präzise und kooperative Arbeit danke ich den Angestellten der Feinmechanikwerkstätten des Physikalischen Instituts I unter der Leitung von Herrn Bölke, sowie der Zentralwerkstatt unter der Leitung von Herrn Schiene.

Besonders verbunden bin ich Robert Knust für seine Geduld und sein stetiges Interesse.

Lebenslauf

Am 1.1.1949 wurde ich als Sohn der Eheleute Lieselotte und Herbert Kroop in Hamburg geboren.

1955 bis 1959 Besuch der Volksschule in Hamburg und Düsseldorf.

1959 bis 1968 Besuch und Abschluß des städtischen Lessing-Gymnasiums in Düsseldorf.

1968 bis 1969 Wehrdienst.

1969 bis 1977 Studium der Physik an der Universität Düsseldorf.

1977 Abschluß mit Diplom im Fach Physik.

1977 bis 1983 Tätigkeit als wissenschaftliche Hilfskraft und wissenschaftlicher Assistent am Physikalischen Institut I der Universität Düsseldorf.

FOTODRUCK J. MAINZ GmbH
Neupforte 13, Nähe Markt, D-5100 Aachen
Telefon: (0241) 27305 und (0241) 38606